



Exploitation des observations satellitaires IASI couplées à un modèle régional pour l'amélioration de la prévision des épisodes de pollution en ozone

Anne Boynard

► To cite this version:

Anne Boynard. Exploitation des observations satellitaires IASI couplées à un modèle régional pour l'amélioration de la prévision des épisodes de pollution en ozone. Océan, Atmosphère. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2009. Français. NNT : . tel-00489656

HAL Id: tel-00489656

<https://theses.hal.science/tel-00489656>

Submitted on 7 Jun 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité :

Sciences de l'Environnement

Présentée par

Anne Boynard

Pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Pierre et Marie Curie

**Exploitation des observations satellitaires IASI
couplées à un modèle régional pour l'amélioration
de la prévision des épisodes de pollution en ozone**

soutenue le 4 décembre 2009

devant le jury composé de :

Mme. Cathy Clerbaux	Co-directrice de thèse
M. Matthias Beekmann	Co-directeur de thèse
M. Brice Barret	Rapporteur
M. Jean-Noël Thépaut	Rapporteur
M. François Ravetta	Président
Mme. Carole Deniel	Examinatrice
Mme. Nathalie Poisson	Examinatrice
M. Claude Camy-Peyret	Examineur-invité

Merci...

Je tiens à dédier ces quelques lignes à toutes les personnes qui m'ont apporté aide et soutien au cours de ces trois années de thèse et sans qui cette thèse n'aurait pas pu voir le jour.

Pour la petite histoire... J'avais commencé un Master de Physique Fondamentale mais j'avouerais que je ne voyais pas trop à quoi ça allait me servir... J'ai eu la chance de découvrir les sciences de l'atmosphère grâce à Laurence Picon et je lui suis profondément reconnaissante pour ce qu'elle a fait pour moi afin que je rejoigne le Master de Sciences De l'Univers, Environnement et Ecologie et puisse m'aventurer dans le monde de la recherche.

Qui dit thèse, dit directeur de thèse... Mes premiers remerciements se dirigent vers mes encadrants, Cathy et Matthias, qui ont eu l'excellente idée d'élaborer ce sujet de thèse combinant les données satellitaires et la modélisation de la pollution (qui par chance est tombé entre mes mains au bon moment) et qui ont accepté de diriger ma thèse. Grâce à vous, j'ai pu aborder les problèmes de qualité de l'air, en particulier l'ozone, sous deux angles différents mais complémentaires : depuis l'espace et depuis un modèle. Je vous remercie tous deux pour vos encouragements, la confiance que vous m'avez accordée et pour m'avoir laissé une grande liberté dans mon travail. Je tiens également à vous remercier de m'avoir permis d'aborder ces problèmes de pollution aux quatre coins du monde à travers les très nombreuses conférences, ateliers et écoles d'été où j'ai pu présenter mes travaux de thèse et faire des rencontres fructueuses ! Cathy, je te remercie pour m'avoir fait partager ta passion pour l'observation de l'atmosphère depuis l'espace et notamment depuis "notre" IASI. Un merci particulier pour tous tes précieux conseils qui m'ont toujours bien guidée et ton soutien (...) qui m'a permis de réaliser cette thèse le plus sereinement possible. Dur dur à certaines périodes... Enfin, je te remercie d'avoir su te rendre disponible (notamment par emails) malgré tes activités débordantes. Matthias, je te remercie pour les nombreuses discussions, scientifiques et autres, toujours vivantes, qu'on a partagées, bien que certaines un peu longuettes à mon goût ;-). Tu es un grand bavard mais ça on ne peut pas te le reprocher ! Je retiendrai toujours cette période de codage informatique passée à tes côtés. Merci pour tout ce que tu m'as appris sur le modèle CHIMERE (jusqu'au petit détail près), l'ozone et les problèmes de qualité de l'air avec notamment ces régimes de COV/NO_x limités.

Qui dit thèse, dit bourse... Je tiens à remercier mes cofinanceurs, l'ADEME et le CNES pour m'avoir permis de réaliser ces travaux de thèse. Un merci particulier à Nathalie Poisson et Carole Deniel, mes deux référentes ADEME et CNES respectivement.

Qui dit thèse, dit suivi de thèse et donc mise place d'un comité de pilotage... Je remercie Sébastien Payan et Laurent Menut d'avoir accepté de suivre ma thèse pendant

ces trois années et de m'avoir donné les bons conseils au bon moment pour que ces travaux avancent de manière optimale.

Qui dit thèse, dit soutenance un jour... Et oui il faut bien passer par là ! Et j'y suis ENFIN passée !!! Et pour pouvoir soutenir, il faut pouvoir rassembler un jury, chose pas si facile... Mais bon on a trouvé ! Je souhaite remercier Brice Barret et Jean-Noël Thépaut d'avoir accepté de rapporter sur mes travaux de thèse et pour l'attention qu'ils y ont porté. Un merci particulier à Jean-Noël pour m'avoir fourni les champs de contraste thermique provenant des analyses ECMWF. Merci également à Nathalie Poisson, Carole Deniel, Claude Camy-Peyret et François Ravetta pour avoir accepté d'examiner mes travaux. Un merci tout spécial à Claude qui a lu mon manuscrit en profondeur et qui l'a corrigé jusqu'au détail près et qui m'a fait bénéficier d'un cours particulier sur le transfert radiatif !

Une thèse, comme je l'ai écrit plus haut, ça dure quelques années et pour qu'elle se déroule le mieux possible, il faut nécessairement un laboratoire d'accueil, un bureau et un ordinateur (pour l'analyse de données, la modélisation mais également l'échange de mails et (surtout) la rédaction de la thèse !), et dans certains cas, le tout en deux exemplaires... Je tiens à remercier Alain Hauchecorne, anciennement directeur du LATMOS (ex Service d'Aéronomie), Daniel Hauser, actuel directeur du LATMOS et Jean-Marie Flaud, directeur du LISA pour m'avoir accueillie au sein de leur laboratoire. Merci également aux GI (ie Gentils Informaticiens), Philippe, Olivier, Catherine et Cyril qui ont pu me réconcilier avec mes deux ordinateurs, qui, bien souvent, m'en faisaient voir de toutes les couleurs. Non non, je ne t'oublie pas Gabriele, merci d'avoir été mon informaticien attitré pendant ma première année de thèse !

Pendant la thèse, on a besoin de données. Je remercie les organismes suivants : AIRBASE, ECMWF, ETHER, GMD, MOZAIC, NDAC, SHADOZ, WOUDC pour les données mises à disposition. Un merci particulier à CathY Boonne pour avoir fourni les données IASI et les données ECMWF colocalisées aux mesures IASI (via le site d'Ether).

Qui dit thèse, dit "co-bureaux"... Je tiens à remercier mes "co-bureaux" du LATMOS Maya et Julien pour les nombreuses discussions (autour de la carte du globe) et fous rires qu'on a partagés pendant ces trois années, et certaines fois jusqu'au bout du monde ! Alors que Maya est un long fleuve tranquille avec quelques petits rapides, je décrirais Julien comme une rivière sauvage... ;-) Je remercie également Gabriele (parti malheureusement bien trop tôt...), Igor et Denis mes "co-bureaux" successifs du LISA.

Ces quelques lignes sont dédiées à mes collègues de la petite "équipe IASI" formée par Cathy. Je tiens à tous vous remercier pour toutes les discussions et/ou échanges de mails qu'on a pu partager et qui m'ont permis d'avancer le plus rapidement possible. Claire, thanks you very much, especially for your precious help in english. Hope ozone is (and/or will be) your best friend (quickly). Juliette, je te remercie pour toute l'aide que tu as pu m'apporter dès que j'en avais besoin. Je te remercie également pour tout ton travail de rapatriement, de stockage, listing, ménage (du disque iasi) et j'en passe... Matthieu, je te remercie pour ta vivacité, ton humour et pour toutes les fois où tu es venu m'embêter (jusqu'au dernier jour... ;-)) pour m'obliger à faire des pauses... ;-) Merci de m'avoir permis de m'évader un peu de cette thèse lors des sorties/soirées qu'on a passés ensemble. J'espère que tu retourneras au "croco" sans avoir le mal de mer... ;-) Maya, comme j'ai écrit plus haut, tu es zen, zen, zen et toujours là quand on a besoin de toi. Merci pour ça !

Remerciements spéciaux à ma chère Solène ! Du tout début à la toute fin (que ce soit pour l'ozone, IASI, CHIMERE, la participation à la lecture et aux corrections de ce manuscrit et les moments très durs), tu auras toujours été là et ça restera dans mon cœur. Ariane et Cat', merci pour vos explications détaillées avec "Atmosphit". Merci pour le bon temps qu'on a passé ensemble, notamment les quelques ch'tites soirées entre Paris et Bruxelles ! Piet, merci de m'avoir fait partager tout ton savoir sur l'ozone et Daniel, merci pour ton aide salvatrice et pour tout ton gros travail de développement (notamment celui du FORLI-O3) !

Je tiens également à remercier mes collègues du LISA, avec qui j'ai travaillé étroitement: Gaëlle (pour ton aide, ta gentillesse et pour avoir toujours été à mon écoute), Adriana (pour ta bonne humeur, ta vivacité et pour les nombreuses discussions qu'on a partagées et qui, à chaque fois, m'ont remise d'aplomb), Gil (pour toutes tes explications que tu auras pu me donner, notamment celles sur les covariances d'erreur du modèle) et Corneli pour ton aide et ta spontanéité. Gil et Adriana, je vous remercie également pour vos conseils de modélisateur qui m'ont permis d'améliorer ce travail.

Et merci à tous mes autres collègues du LATMOS et du LISA avec qui j'ai pu échanger quelques mots mais que je n'énumère pas ici (désolée...).

En dehors du bureau, la vie continue (et heureusement !). Merci à tous ceux qui ont contribué à son animation, notamment pendant les écoles d'été, les conf, les "after-conf" et les soirées (Matthieu, Catherine, Manu, Maya, Aline, Ariane, Corinne, Alexis, François, Killian, Eric, Mathieu et tous les autres qui se reconnaîtront).

Je remercie du fond du cœur ma famille, et tout spécialement mes parents, Michel et Eliane, pour leur soutien, leurs encouragements et leur intérêt pour mon travail, mes sœurs, Marion, Claire et Delphine, et tous mes autres proches pour leur tentative de compréhension de mon travail ! ;-). Afin de n'oublier personne, je remercie "en bloc" tous mes amis de naissance ou d'adoption. Vous vous reconnaitrez... Enfin, je remercie mon cher et tendre Guillaume qui a toujours cru en moi et qui a réussi à me supporter pendant ces trois années. Paraphrasant Beigbeder, il disait « L'amour dure 3 ans, la thèse aussi. » et bien me voilà Docteur ! Merci pour tout !

Résumé

Les observations satellitaires contribuent désormais à la surveillance de la composition troposphérique et à la prévision de la qualité de l'air, en fournissant une information quantitative sur l'ozone et ses précurseurs. L'objectif de ces travaux de thèse a été d'exploiter le couplage entre les observations satellitaires IASI, qui a été lancé à bord du satellite MetOp en octobre 2006, et le modèle CHIMERE, afin de documenter l'amélioration de la prévision de la qualité de l'air.

Ces travaux s'appuient d'abord sur l'inversion des concentrations d'ozone à partir des spectres infrarouges mesurés par l'instrument IASI pour restituer des colonnes totales d'ozone et des colonnes partielles d'ozone notamment dans la troposphère. Ces mesures ont été validées par des observations indépendantes : les colonnes totales sont comparées à des mesures ultra-violettes fournies par l'instrument satellitaire GOME-2 (également à bord du satellite MetOp) et les instruments au sol du réseau Brewer-Dobson mais également des mesures infrarouges (TES et AIRS). Les colonnes partielles sont, elles, comparées à des mesures de ballons sonde.

Un autre volet de mes travaux de thèse consiste à préparer l'assimilation des données IASI dans le modèle CHIMERE, en utilisant un Filtre de Kalman d'Ensemble. Cette méthode permet d'établir les covariances des erreurs du modèle à partir d'un ensemble de différentes configurations du modèle. Dans ce contexte, un travail sur la construction d'un ensemble reflétant au mieux la réalité a été entrepris. La qualité de l'ensemble a été évaluée, dans la dimension verticale et en surface, à partir de différents outils, qui reposent tous sur des comparaisons aux observations.

Abstract

Satellite observations now contribute to the monitoring of the tropospheric composition and the air quality forecasting by providing quantitative information on ozone and its precursors. The objective of this thesis was to exploit the coupling between IASI satellite observations, which was launched on board the MetOp platform in October 2006, and the model CHIMERE in order to document the improvement of the air quality forecasting.

This thesis is based primarily on the retrieval of ozone concentrations from infrared spectra measured by the IASI instrument in order to retrieve total ozone columns and ozone partial columns especially in the troposphere. These measurements have been validated by independent observations: the total columns are compared to ultra-violet measurements provided by the satellite instrument GOME 2 (also on board the MetOp satellite) and the ground-based instruments of the Brewer-Dobson network but also infrared measurements (AIRS and TES). The partial columns are compared to ozonesonde measurements.

Another component of my thesis was to prepare IASI data assimilation into the model CHIMERE, using a Kalman Filter Ensemble. This method allows the establishment of modelling error covariances from a set of different configurations of the model. In this context, work on the construction of an ensemble that best reflects the reality has been undertaken. The quality of the ensemble was evaluated in the vertical dimension and at the surface from different tools, which are all based on comparisons with observations.

Table des matières

1	Introduction	13
1.1	La pollution de l'air	14
1.1.1	Le milieu atmosphérique	14
1.1.2	Les différents types et échelles de pollution	15
1.2	Les moyens de sondage de l'atmosphère	16
1.2.1	Les mesures au sol	17
1.2.2	Les mesures aéroportées	18
1.2.3	Les mesures ballons	18
1.2.4	Les mesures satellitaires	18
1.3	Modélisation de la pollution	20
1.3.1	Les modèles de chimie-transport	20
1.3.2	La prévision de la pollution	20
1.3.3	Incertitudes dans les modèles	21
1.4	Assimilation de données	22
1.4.1	Assimilation variationnelle	22
1.4.2	Assimilation séquentielle	22
1.5	Motivations de la thèse	24
2	Dynamique et chimie de l'ozone troposphérique	27
2.1	Structure verticale de l'atmosphère	29
2.2	Dynamique de la troposphère	31
2.2.1	Circulation générale troposphérique	31
2.2.2	Circulation générale de la stratosphère	32
2.2.3	Echanges verticaux stratosphère-troposphère	33
2.2.4	Instabilité convective et barocline	34
2.2.5	La couche limite atmosphérique	36
2.2.6	Temps caractéristiques du transport dans la troposphère	37
2.3	Mécanismes de production et de destruction de l'ozone troposphérique	38
2.3.1	Production de l'ozone	39
2.3.2	Destruction de l'ozone	41
2.3.3	Les régimes chimiques : NO _x limité/COV limité	43
2.3.4	Sources et puits des principaux précurseurs	44
2.3.5	Exemple de profils typiques d'ozone	45
2.4	Le modèle CHIMERE	47
2.4.1	Description du modèle	48
2.4.2	Géométrie du modèle continental	48
2.4.3	Données d'entrée du modèle	50
2.4.4	La chimie	52

2.4.5	La physique	52
2.5	Résumé et conclusions	53
3	Télédétection spatiale dans l'infrarouge	55
3.1	Le transfert radiatif dans l'infrarouge thermique	55
3.1.1	Emission du rayonnement	55
3.1.2	L'équation du transfert radiatif et le modèle direct	57
3.1.3	Interaction rayonnement-matière	60
3.2	Rôle du contraste thermique	65
3.2.1	Définition	65
3.2.2	Le contraste thermique au-dessus de l'Europe	66
3.3	Inversions de spectres	69
3.3.1	La méthode d'estimation optimale	69
3.3.2	Le réseau de neurones	73
3.4	L'instrument IASI	76
3.4.1	Le spectromètre à transformation de Fourier	77
3.4.2	La mission IASI/MetOp	79
3.5	Résumé et conclusions	85
4	Inversion de l'ozone	87
4.1	Sélection des spectres non nuageux	89
4.2	Colonne totale d'ozone (<i>NN</i>)	89
4.2.1	Description du <i>NN</i>	89
4.2.2	Résultats des inversions	92
4.3	Profils verticaux d'ozone (<i>Atmosphit</i>)	94
4.3.1	Information <i>a priori</i>	94
4.3.2	Paramètres d'inversion	96
4.3.3	Caractérisation des observations IASI d'ozone	96
4.3.4	Bilan d'erreur global	99
4.4	Caractérisation d'un cas particulier : une intrusion stratosphérique	100
4.4.1	Inversion de l'ozone avec le <i>NN</i> et <i>Atmosphit</i>	100
4.4.2	Fonctions de lissage et contenu en information	102
4.4.3	Analyse d'erreur	102
4.5	Résumé et conclusions	103
5	Validation des inversions IASI avec des mesures corrélatives	105
5.1	Colonnes totales d'ozone	106
5.1.1	Comparaison avec les mesures UV-visible	106
5.1.2	Comparaison avec des mesures IR	117
5.1.3	Conclusions	123
5.2	Ozone troposphérique	123
5.2.1	Comparaison avec des mesures de sonde d'ozone	123
5.2.2	Comparaison avec le modèle CHIMERE	127
5.3	Résumé et conclusions	129
6	Evaluation de la covariance d'erreur des champs d'ozone simulés par le modèle CHIMERE par une méthode d'ensemble	131

6.1	Introduction à la modélisation d'ensemble	132
6.1.1	Sources d'incertitudes de la modélisation et formulation de l'ensemble ..	132
6.1.2	Les méthodes d'ensemble existantes	133
6.1.3	Méthode d'évaluation de la qualité d'un ensemble	135
6.2	Sensibilité du modèle CHIMERE à ses paramètres.....	139
6.2.1	Mise en place de l'étude de sensibilité	139
6.2.2	Outils statistiques d'analyse.....	140
6.2.3	Identification des paramètres les plus incertains	141
6.2.4	Analyse détaillée de l'étude de sensibilité	145
6.2.5	Conclusion	149
6.3	Mise en œuvre de l'ensemble	149
6.3.1	Estimation des longueurs de décorrélation spatiale des perturbations	149
6.3.2	Estimation des longueurs de décorrélation temporelle des perturbations..	156
6.3.3	Outils d'évaluation de l'ensemble	157
6.4	Evaluation de la première configuration de l'ensemble	159
6.4.1	Evaluation sur la verticale.....	161
6.4.2	Evaluation à la surface	164
6.4.3	Conclusion intermédiaire.....	169
6.5	Evaluation d'une deuxième configuration de l'ensemble.....	171
6.5.1	Evaluation sur la verticale.....	172
6.5.2	Evaluation à la surface	172
6.5.3	Extension de l'évaluation du deuxième ensemble à l'été 2004	174
6.5.4	Conclusion intermédiaire.....	175
6.6	Comparaison avec d'autres approches et limitations.....	175
6.6.1	Comparaisons avec d'autres approches.....	175
6.6.2	Limitations de notre approche	176
6.7	Résumé et conclusions.....	177
7	Conclusions générales et perspectives	179
A	Réglementation et gestion de la qualité de l'air	185
A.1	Lois sur la pollution atmosphérique.....	185
A.2	Les principales institutions en France.....	186
B	Les bases de l'assimilation de données séquentielle	189
B.1	Quelques définitions	189
B.2	Interpolation Statistique	190
B.3	Le Filtre de Kalman	191
B.4	Le Filtre de Kalman d'Ensemble	192
C	Le tourbillon potentiel : un traceur de masses d'air stratosphérique	193
D	Suite des résultats de l'étude de sensibilité du modèle CHIMERE à ses paramètres d'entrée	195
D.1	Emissions biogéniques de COV	195
D.2	Photolyse de l'ozone	195
D.3	Taux de mélange vertical	195

D.4	Humidité spécifique	198
D.5	Vitesse de réaction de $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$	198
D.6	Influence des nuages sur l’ozone via le flux actinique	198
E	Evaluation de l’ensemble pour l’été 2004	199
E.1	Evaluation sur la verticale.....	199
E.2	Evaluation à la surface	202
F	Measurement of total and tropospheric ozone from IASI: comparison with correlative satellite, ground-based and ozonesonde observations	203
	Abréviations et acronymes	223
	Bibliographie	227

Chapitre 1

Introduction

L'homme ne peut vivre sans respirer, chaque jour il "consomme" en moyenne un volume total d'environ 15 000 litres d'air. L'air est donc un élément indispensable à toute vie sur Terre et veiller à sa qualité est une nécessité afin de protéger la santé humaine, mais aussi afin de préserver notre environnement ainsi que le climat de demain qui est menacé par une augmentation des températures atmosphériques liée aux émissions de gaz à effet de serre.

Il est reconnu que les activités humaines contribuent largement à modifier la composition chimique de l'atmosphère, de l'échelle locale, régionale jusqu'à l'échelle globale (IPCC, 2007). La conséquence directe de cette pollution de l'atmosphère est la dégradation de notre environnement, ce qui a de multiples effets. Alors que la pollution locale (en milieu industriel ou urbain) présente principalement des risques pour la santé humaine, la pollution à l'échelle globale présente des risques de déséquilibre pour les écosystèmes et le climat de la planète.

La Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie (LAURE) adoptée le 30 décembre 1996 en France définit la pollution de l'air comme *l'introduction par l'homme, directement ou indirectement, dans l'atmosphère et les espaces clos, de substances ayant des conséquences préjudiciables de nature à mettre en danger la santé humaine, à nuire aux ressources biologiques et aux écosystèmes, à influencer sur les changements climatiques, à détériorer les biens matériels et à provoquer des nuisances olfactives excessives*.

Les polluants de l'air émis par l'homme sont issus de deux types de sources de pollution : les *sources fixes* telles que les secteurs tertiaire et résidentiel, les industries ou l'agriculture et les *sources mobiles* telles que le trafic automobile, aérien ou maritime.

Ce premier chapitre introductif a pour objectif de présenter le contexte, sociétal et scientifique, qui motive la démarche adoptée au cours de cette thèse.

1.1 La pollution de l'air

1.1.1 Le milieu atmosphérique

La partie de l'atmosphère touchée par les problèmes de pollution s'étend jusqu'à 50 km d'altitude environ. Elle est divisée en deux grands domaines :

- la troposphère s'étendant de la surface jusqu'à ce qu'on appelle la tropopause située à environ 8-16 km d'altitude selon la latitude et la saison;
- la stratosphère située juste au-dessus de la troposphère et s'étendant de la tropopause à 50 km d'altitude.

Ces régions se distinguent principalement par l'évolution de la température avec l'altitude. Alors que la température moyenne de l'air diminue dans la troposphère, elle augmente dans la stratosphère.

L'air "naturel" dans la troposphère, se compose de diazote à 78%, de dioxygène à 21% et d'argon à 1%. Outre ces composés majoritaires se trouvent des composés dits minoritaires (dioxyde carbone - CO_2 , méthane - CH_4 , protoxyde d'azote - N_2O , monoxyde de carbone - CO , ozone - O_3 , etc), dont la concentration, qui dépend de cycles biochimiques et géochimiques largement influencés par les activités humaines, est extrêmement variable.

Parmi les polluants de l'air émis directement par l'homme, dits *polluants primaires*, on trouve les oxydes de soufre (SO_2), d'azote¹ (NO_x) et de carbone, les composés organiques volatils² (COV), les particules fines (PM2.5, PM10) ainsi que les métaux lourds. Ces polluants sont impliqués dans divers mécanismes physiques et chimiques tels que :

- le transport horizontal et vertical par les vents;
- le dépôt sec et humide;
- les réactions chimiques dans l'atmosphère qui, en présence de rayonnement solaire conduisent à la formation de polluants, dits *secondaires*, tels que l'ozone.

Ainsi, selon leurs propriétés physico-chimiques, les polluants de l'air ont une durée de vie très variable (c.f. tableau 1.1). Alors que les polluants à courte durée de vie (quelques minutes à quelques heures) occasionnent principalement des pollutions locales, ceux à longue durée de vie sont transportés sur de longues distances et occasionnent des pollutions régionales, voire planétaires. Il est donc nécessaire de tenir compte de toutes ces échelles spatiales afin de mieux analyser la pollution atmosphérique et lutter contre ses effets.

¹ Les NO_x regroupent principalement deux polluants : le monoxyde d'azote (NO) et le dioxyde d'azote (NO_2)

² Les COV sont composés de carbone et d'hydrogène pouvant facilement se trouver sous forme gazeuse dans l'atmosphère. Ils font partie de la famille des hydrocarbures et sont regroupés en cinq familles : alcanes, alcènes et alcynes, aldéhydes et cétones, hydrocarbures aromatiques monocycliques, hydrocarbures halogénés.

Tab. 1.1 - Ordre de grandeurs de la durée de vie de quelques polluants.

Polluants	Durée de vie
Ozone (O ₃)	de quelques jours dans la couche limite à quelques semaines dans la troposphère libre
Oxydes de d'azote (NO _x =NO+NO ₂)	1.5 jours
Dioxyde de soufre (SO ₂)	5 jours
Particules fines (PM2.5, PM10)	quelques semaines
Composés Organiques Volatils (COV)	~ 1 heure à 2 mois
Monoxyde de carbone (CO)	2 mois
Méthane (CH ₄)	7 ans
Chlorofluorocarbures (CFC)	7-150 ans
Polluants Organiques Persistants (POP)	

1.1.2 Les différents types et échelles de pollution

C'est depuis la révolution industrielle du 19^{ème} siècle que la pollution de l'air, caractérisée par une consommation croissante du charbon comme combustible pour l'industrie et le chauffage, est devenue la plus manifeste.

Cette pollution a longtemps été perçue comme un problème concernant uniquement les zones industrielles et urbanisées alors que de nombreux scientifiques essayaient, en vain, de sensibiliser les populations aux risques de pollution à plus grande échelle. Ce n'est qu'au cours de la deuxième moitié du 20^{ème} siècle que les problèmes de qualité de l'air ont été considérés, non plus comme un problème local mais comme un problème régional, voire continental (c.f. tableau 1.2).

La pollution **locale**, dite de proximité, engendrée au voisinage des sources d'émission de polluants (i.e. en milieu industriel ou urbain), présente des risques directs sur la santé de l'homme. Ce type de pollution a causé, dans le passé, de sérieux problèmes sanitaires. L'un des épisodes les plus célèbres est celui du smog de Londres lors de l'hiver 1952. Suite à des conditions météorologiques particulièrement stagnantes et par un temps froid et humide, des concentrations en dioxyde de soufre extrêmement élevées entraînèrent en deux semaines la mort d'environ 4000 personnes (Brimblecombe, 1987). Dans un tout autre registre, on peut citer également la pollution accidentelle liée à la catastrophe de Bhopal, survenue en décembre 1984, qui est la plus importante catastrophe industrielle à ce jour. L'explosion d'une usine de pesticides a dégagé 40 tonnes d'un gaz hautement toxique (l'isocyanate de méthyle) dans l'atmosphère de la ville, tuant 20 000 personnes. De façon générale, les polluants impliqués, qualifiés de polluants primaires, sont les oxydes de soufre et d'azote, le monoxyde de carbone, les COV ainsi que les particules fines.

Tab. 1.2 - Les principaux problèmes environnementaux, polluants impliqués ainsi que les différentes échelles de pollution. D'après Sportisse (2008)

"Pollution"	Historique	Polluants	Echelle
Smog de Londres	Londres, 1952	SO ₂	locale
Photochimie	Los Angeles, (années 40)	NO _x , COV, O ₃	locale, régionale
Pluies acides	USA (années 60)	SO ₂	régionale
Pollution transfrontière	Europe (années 70)	Sulfates, nitrates	régionale
Ozone stratosphérique	"Trou" (années 80)	CFCs	globale
Effet de serre et climat	années 90	CO ₂ , CH ₄	globale

La pollution **régionale** se manifeste généralement dans les régions distantes de quelques dizaines à quelques centaines de kilomètres des zones urbaines ou industrielles. Ces régions sont caractérisées par la survenue de phénomènes physico-chimiques complexes tels que :

- les pluies acides résultant essentiellement de la dispersion dans l'atmosphère de polluants (SO₂, NO_x) et leur oxydation formant des acides (H₂SO₄, HNO₃) provoquant l'acidification des précipitations, et par la suite, des sols, des lacs et des forêts;
- la pollution photochimique dont le principal polluant est l'ozone, gaz au fort pouvoir oxydant qui est nocif pour la santé de l'homme et la végétation.

A l'échelle **globale**, la pollution atmosphérique est à l'origine de deux phénomènes présentant des risques vis-à-vis des écosystèmes ainsi que du climat de la planète :

- la destruction de l'ozone stratosphérique se produisant notamment du fait de la présence des CFCs;
- l'effet de serre additionnel (dont les principaux gaz contribuant sont la vapeur d'eau – H₂O, le CO₂, CH₄, N₂O et O₃) entraînant un réchauffement de la planète.

Ces différents problèmes de pollution ont entraîné la mise en place de législations nationales et internationales dans le domaine de la qualité de l'air (c.f. Annexe A).

1.2 Les moyens de sondage de l'atmosphère

Un des enjeux pour la communauté scientifique est l'observation et l'étude de la chimie atmosphérique dont les objectifs principaux sont la surveillance de la qualité de l'air et celle du climat de notre Planète. Aucune technique d'observation ne permet actuellement de fournir une mesure globale, continue et simultanée de toutes les variables géophysiques présentes dans l'atmosphère. Ainsi si l'on veut étudier la composition de l'atmosphère, il est nécessaire de bâtir un système intégré d'informations issues de différentes sources d'observation telles que les mesures en surface, les mesures aéroportées ou ballons et les mesures spatiales, chacune de ces sources d'observation ayant ses avantages et ses limites.



Fig. 1.1 - Les principaux moyens d'observation de la troposphère. De gauche à droite : les mesures lidar, ballons, avion et satellitaires.

Cette section a pour objectif de donner un aperçu des différents instruments utilisés aujourd'hui pour l'observation de l'atmosphère (c.f. figure 1.1), notamment celle de l'ozone.

1.2.1 Les mesures au sol

Les stations d'observation au sol comportent un certain nombre d'instruments fournissant des mesures en continu. Ces stations sont de plus en plus regroupées en réseau pouvant couvrir une région, un pays ou encore le globe terrestre. Parmi les réseaux actuels figure le réseau national de surveillance de la qualité de l'air en France qui fournit des mesures de l'air directement respiré par l'homme ou encore le réseau international de surveillance de la stratosphère NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) regroupant plus de 70 stations de mesures sur l'ensemble du globe donnant accès à la distribution verticale ou à la colonne totale intégrée sur toute l'épaisseur de l'atmosphère de nombreuses molécules atmosphériques dont l'ozone.

Les principaux instruments basés au sol utilisés pour mesurer la distribution verticale de l'ozone ou la colonne totale sont le lidar (Light Detection And Ranging) et les spectromètres Dobson et Brewer.

Ces stations de mesures présentent deux avantages principaux. D'une part, elles permettent la mesure précise d'un grand nombre de variables géophysiques, telles que les molécules atmosphériques (ozone, dioxyde d'azote, etc). D'autre part, elles permettent des observations à long terme en raison du coût relativement peu élevé de leur maintenance. Cependant leur couverture spatiale est très limitée et non uniforme sur le globe. En effet, certaines régions du globe restent encore largement sous-documentées, telles que les régions tropicales et les océans (Delmas, 2005).

1.2.2 Les mesures aéroportées

Les avions instrumentés permettent également la mesure de la composition chimique de l'atmosphère. Il en existe deux types : les avions de recherche et les avions commerciaux.

Les avions de recherche, éléments clés des campagnes de mesures, permettent de mesurer un grand nombre d'espèces chimiques entre la couche limite et environ 10-12 km d'altitude avec des échelles de temps spatiales et temporelles complémentaires à celles des observations au sol. Certains avions peuvent monter jusqu'à la basse stratosphère (environ 20 km d'altitude) mais dans ce cas-là les instruments sont automatisés et l'expérimentateur ne peut pas être à bord de l'avion. Une limitation principale de ce type d'avion est leur coût assez élevé.

Pour pallier ce problème de coût, les instruments de mesure sont embarqués sur des avions commerciaux, ce qui impose une automatisation de ces mesures, mais permet de fournir des mesures plus abondantes et régulières. Cependant, contrairement aux avions de recherche, ces mesures sont assez limitées en raison du peu d'espèces chimiques pouvant être mesurées : ceci est dû à des contraintes d'installation des instruments sur ce type d'avions mais également au plan de vol qui est non flexible. Le programme MOZAIC (Measurements of OZone, water vapour, carbon monoxide and nitrogen oxides by Airbus in-service airCRAFT), par exemple, permet d'effectuer des mesures des paramètres météorologiques et des concentrations de gaz traces (O_3 , CO, H_2O , NO_y) pendant des vols réguliers opérés par les compagnies aériennes.

90% des mesures aéroportées sont effectuées aux altitudes de croisière des avions, c'est-à-dire entre 9 et 12 km. Les 10% restant correspondent à des mesures de profils verticaux obtenus lors du décollage et de l'atterrissage des avions (Delmas, 2005). Ces mesures sont plutôt dédiées à l'étude de la haute troposphère et du transport entre la troposphère et la stratosphère.

1.2.3 Les mesures ballons

Un autre moyen de sonder l'atmosphère est le ballon sonde. Son principal intérêt réside dans sa capacité à atteindre des altitudes qui sont de l'ordre de 35 km (altitude où le ballon éclate), inaccessibles aux avions. Bien que leur coût de développement et de maintenance soit peu élevé, les ballons sonde fournissent tout comme les stations de surface et les instruments aéroportés, une couverture spatiale et temporelle très limitée.

1.2.4 Les mesures satellitaires

Le sondage de l'atmosphère depuis l'espace est le seul moyen permettant une image globale de la Terre. La majorité des instruments satellitaires dédiés à l'observation de la composition chimique de l'atmosphère reposent sur une méthode dite de télédétection passive, c'est-à-dire sur la mesure à distance d'un rayonnement émis par une source naturelle. Les principales sources utilisées sont le rayonnement solaire ultra-violet et le rayonnement infrarouge (IR) émis par la surface de la Terre.

Pour les études de la composition de la troposphère, l'observation en visée au nadir (c'est-à-dire verticale en visée vers le bas) est généralement utilisée car elle permet

d'obtenir une meilleure sensibilité à la troposphère et une bonne résolution spatiale. La mesure satellitaire ne donne pas accès directement à la concentration d'une molécule atmosphérique mais seulement au rayonnement au sommet de l'atmosphère; il est donc nécessaire d'appliquer un algorithme dit d'inversion afin de restituer les concentrations à partir du rayonnement mesuré par un instrument depuis l'espace.

Avec l'intérêt croissant d'étudier la couche d'ozone stratosphérique, notamment sa diminution due à la présence des CFCs, un grand nombre d'instruments en visée au nadir ont été lancés en orbite polaire pour mesurer les quantités d'ozone. La plupart de ces instruments mesurent des colonnes totales d'ozone, avec une information limitée sur sa distribution verticale. Malgré la difficulté à séparer la composante troposphérique de la contribution stratosphérique de l'ozone, les mesures satellitaires sont un bon moyen de sondage de la troposphère comparativement aux observations aéroportées ou fournies par des ballons sonde car elles sont globales.

Les premières distributions d'ozone troposphérique ont été obtenues à partir des mesures, dans le domaine spectral de l'ultra-violet et du visible (UV-vis), de l'instrument TOMS (Total Ozone Measurement Spectrometer) en soustrayant l'ozone stratosphérique de l'ozone total (Fishman et Larsen, 1987; Fishman et al., 1990). Par la suite, diverses méthodes basées sur la différence entre la colonne totale et la colonne stratosphérique ont été développées pour déduire la colonne troposphérique d'ozone à partir des mesures TOMS (Ziemke et al., 1998; Thompson et al., 1999; Chandra et al., 2003). Plus récemment, d'autres approches ont été utilisées pour restituer directement des profils d'ozone (et donc l'ozone troposphérique) à partir des mesures GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) (Hoogen et al., 1999; Liu et al., 2005). Les instruments UV-vis restent cependant par nature peu sensibles au contenu troposphérique de l'ozone.

Les instruments satellitaires en visée au nadir utilisant le domaine spectral de l'infrarouge thermique (TIR) pour sonder la troposphère offrent une sensibilité maximale dans cette couche avec une résolution verticale de l'ordre de 6 km (Coheur et al., 2005; Worden et al., 2007). Les premières distributions de l'ozone total et troposphérique ont été obtenues à partir de l'instrument IMG (Interferometric Monitor Greenhouse gases) (Turquety et al., 2002, 2004; Coheur et al., 2005). Cependant l'instrument a été opérationnel à bord de la plateforme japonaise ADEOS seulement pendant 10 mois en 1996. Actuellement il existe trois instruments mesurant dans le domaine TIR en visée au nadir et fournissant des mesures d'ozone à partir de satellites en orbite polaire : AIRS (Atmospheric InfraRed Sounder) / AQUA, TES (Tropospheric Emission Spectrometer) / AURA et IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge ou en anglais Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) / MetOp-A. De nombreuses analyses, utilisant notamment les mesures TES et AIRS, ont mis en évidence des tendances saisonnières (Divakarla et al., 2008) à une augmentation de la pollution ou encore un transport de l'ozone à longue distance (Zhang et al., 2006; Jourdain et al., 2007; Parrington et al., 2008). Plus récemment, le potentiel des instruments TIR à mesurer l'ozone troposphérique a été utilisé afin d'analyser les événements de pollution photochimique ayant eu lieu pendant la vague de chaleur de l'été 2007 en Europe du sud, avec l'instrument IASI (Eremenko et al., 2008). Cette dernière étude est une première étape vers l'utilisation des observations satellitaires pour surveiller l'ozone troposphérique et pour améliorer les prévisions de la qualité de l'air et les modèles de chimie-transport.

1.3 Modélisation de la pollution

1.3.1 Les modèles de chimie-transport

Les modèles de chimie-transport calculent les concentrations de différents polluants pour une région donnée, en simulant les processus physiques et chimiques se déroulant dans l'atmosphère. Ces modèles sont développés notamment pour la modélisation de la pollution atmosphérique. Le premier modèle de simulation de la pollution photochimique à l'échelle urbaine a été développé par Reynolds et al. (1973). Ce dernier a été utilisé pour la première fois pour l'étude de la pollution à Los Angeles.

Le développement des modèles à l'échelle urbaine a permis de considérables progrès dans le domaine de la pollution atmosphérique. En particulier, il a été montré que l'échelle spatiale des épisodes de pollution photochimique pouvait très largement dépasser l'échelle urbaine, ce qui nécessite de développer des outils de simulation à plus grande échelle. En effet, bien que les pics de pollution dans les basses couches de l'atmosphère soient généralement observés près des sources d'émissions de polluants primaires ou dans leur panache (zone industrielle, agglomération urbaine), ils ne sont pas seulement dus à la pollution locale (Blond, 2002). Une part non négligeable de la pollution photochimique provient du transport à longue distance de polluants (ozone et ses précurseurs). Dans ce contexte, des modèles couvrant des échelles régionales (échelle du pays ou du continent), voire globales ont été développés. En particulier, le modèle de chimie-transport CHIMERE a été développé par le Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD), l'Institut National de l'Environnement Industriel et des RISques (INERIS) et le Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA) : il couvre l'Europe de l'Ouest tout en permettant de zoomer les simulations sur des régions urbaines.

1.3.2 La prévision de la pollution

Afin d'informer le public de l'occurrence des épisodes de pollution à l'ozone, la majorité des pays développés dispose d'un système de prévision des niveaux d'ozone. Le système de prévision de l'ozone en France est le système PREV'AIR, basé sur une approche statistique (Honoré et al., 2008; Rouil et al., 2009). Ce système, devenu opérationnel en 2003, résulte d'une étroite coopération entre plusieurs organisations publiques. Le consortium PREV'AIR inclut l'INERIS qui a développé le système, l'ADEME, l'Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL), le Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) et le centre météorologique français (Météo-France). Il est financé par le Ministère français en charge de l'environnement.

Les prévisions de la qualité de l'air sont diffusées quotidiennement jusqu'à deux jours d'échéance sur le serveur de PREV'AIR (www.prevoir.org) et sont fournies pour l'ozone, le dioxyde d'azote et les particules. Elles sont disponibles à différentes échelles spatiales (globale, européenne et de la France) selon le polluant considéré. Elles sont le résultat de simulations numériques réalisées à l'aide de modèles de chimie-transport couplées à des prévisions météorologiques. En particulier, le modèle CHIMERE est utilisé à l'échelle régionale et nationale.

Tab. 1.3 - Scores des prévisions des maxima journaliers d’ozone pour les périodes de printemps/été 2004-2006 pour le jour même. Les valeurs sont données en pourcentage. D'après Honoré et al. (2008)

2004-2006 Europe	Zone rurale	Zone péri-urbaine	Zone urbaine
Événement prévu	27.9	27.2	35.0
Fausse alerte	0.6	0.8	0.8
Événement non détecté	72.1	72.8	65.0

Pour chaque échéance de la prévision quotidienne, des indicateurs statistiques, tels que le biais, l’erreur RMS et les coefficients de corrélation sont calculés pour chaque espèce afin de comparer les concentrations de polluants prévues aux observations disponibles, et ainsi évaluer les performances des modèles de prévision de la qualité de l’air utilisés dans PREV’AIR. Une analyse approfondie de ces résultats est donnée dans Honoré et al. (2008). En général, il est démontré que les performances du système PREV’AIR respectent l’état de l’art, ce qui a également été démontré dans les travaux d’intercomparaison de modèles européens de Vautard et al. (2007). Les scores sont particulièrement satisfaisants pour l’ozone de surface avec un coefficient de corrélation de 0.84 (Honoré et al., 2008). Ils sont cependant moins fiables pour les pics de pollution, comme le montre le tableau 1.3 qui donne le pourcentage des prévisions correctes pour le jour même, les fausses alertes et les événements non détectés, par rapport au seuil d’information de l’ozone ($180 \mu\text{g m}^{-3}$), pour la période 2004-2006. Notons que le pourcentage d’événements non détectés est très élevé car bien souvent la prévision propose un niveau très proche du seuil d’alerte mais toutefois inférieur.

1.3.3 Incertitudes dans les modèles

Les modèles de chimie-transport permettent aujourd’hui de simuler de manière assez réaliste les concentrations des différents polluants photochimiques, au moins pour la phase gazeuse. La fiabilité et la précision des modèles de chimie-transport se sont considérablement accrues au cours de la dernière décennie (Honoré et al, 2008; van Loon et al, 2007; Vautard et al, 2007). Cependant l’utilisation de ces outils pour la prévision opérationnelle de la qualité de l’air ainsi que pour l’évaluation des scénarios de réduction des émissions exige de pouvoir améliorer encore leurs performances. En effet, de nombreuses sources d’incertitudes demeurent, liées soit à la formulation des processus (mécanisme chimique, transport turbulent, dépôt sec et humide) soit aux données d’entrée (émissions, forçage météorologique, conditions aux limites chimiques). Les travaux portant sur la caractérisation et la quantification de ces incertitudes montrent que la plus grande source d’incertitude pour simuler la pollution photo-oxydante provient des incertitudes associées aux cadastres d’émissions des polluants primaires (Beekmann et Derognat, 2003; Menut, 2003). Cependant d’autres sources d’incertitude existent. Ainsi, dans le cas de l’ozone, la représentation des conditions aux limites du domaine considéré, des taux de photolyses via notamment une représentation plus fine des types de nuages et des propriétés optiques associées ou du dépôt sec vont également jouer un rôle important dans

la précision des champs simulés. Dans le cas des particules, notamment pour l'aérosol organique, les mécanismes de formation, de transformation et de dépôt humide sont difficiles à quantifier en raison de l'incertitude sur les champs de précipitation.

Ainsi pour améliorer la fiabilité de tels modèles (et *a posteriori* celle des prévisions de la qualité de l'air), on peut soit réduire les incertitudes liées à la formulation des processus dans les modèles et aux données d'entrée (notamment les émissions de polluants primaires) soit corriger le modèle *a posteriori* en utilisant des observations. C'est cette deuxième option qui nous intéresse dans ces travaux, notamment en utilisant les observations satellitaires qui permettent d'obtenir une couverture spatiale globale. Cette deuxième option est mise en œuvre à partir d'une technique dite d'assimilation de données.

1.4 Assimilation de données

L'assimilation de données est une technique mathématique d'optimisation permettant de combiner au mieux des informations, issues de l'observation et de la simulation numérique, sur un système physique afin d'en améliorer la description.

Il existe deux grandes familles classiques de méthodes d'assimilation de données : les méthodes variationnelles (Le Dimet et Talagrand, 1986) basées sur une procédure de minimisation et les méthodes séquentielles reposant sur la théorie de l'estimation statistique ou sur le Filtre de Kalman (Kalman, 1960). Quelle que soit la méthode utilisée, le but de l'assimilation de données est le même : tenir compte des observations pour décrire au mieux l'état de l'atmosphère, via l'utilisation d'un modèle. Ces deux méthodes d'assimilation ont chacune des avantages et inconvénients que l'on va brièvement présenter dans la suite.

1.4.1 Assimilation variationnelle

Le principe de base de l'assimilation variationnelle consiste à ajuster la solution du modèle à toutes les observations disponibles sur toute la période d'assimilation ou à une échéance donnée. Dans cette approche, l'analyse va tenir compte à un instant t aussi bien des observations antérieures que des observations postérieures. Cette méthode présente ainsi l'avantage de pouvoir ré-analyser les épisodes passés (Bouttier et Courtier, 1999).

En pratique, on cherche la solution qui minimise une fonction de coût représentant la distance séparant les observations de la solution modélisée (Talagrand, 1997). La détermination de ce minimum s'effectue généralement de manière itérative, et nécessite de calculer à chaque itération le maximum du gradient de la fonction coût par rapport aux paramètres atmosphériques utilisés dans le modèle. Ce calcul est effectué en utilisant les équations adjointes du modèle qui intègrent le modèle en quelque sorte en arrière. Actuellement on dispose de deux méthodes d'assimilation variationnelle appelées 3D-VAR et 4D-VAR (incluant la dimension temporelle).

1.4.2 Assimilation séquentielle

Le principe de l'assimilation séquentielle repose sur la prise en compte d'une observation au moment où celle-ci est disponible, à un instant t . L'état prévu du modèle (l'ébauche) est alors corrigé à cet instant t , et le nouvel état du modèle (l'analyse) est

utilisé pour le calcul à l'instant $t+\delta t$. L'état du modèle est ainsi actualisé autant de fois qu'il y a d'observations disponibles. Différentes techniques sont utilisées, telles que l'Interpolation Statistique (Daley, 1991) et le Filtre de Kalman (Kalman, 1960) qui seront brièvement décrites dans la suite. Le lecteur est invité à se référer à l'Annexe B pour une description plus détaillée des différentes méthodes séquentielles.

Interpolation Statistique

L'Interpolation Statistique a été longtemps la méthode la plus utilisée dans les centres de prévision météorologique afin de produire des analyses météorologiques. Cette méthode présente l'avantage d'être relativement facile à mettre en œuvre, cependant les covariances d'erreur du modèle, information essentielle à l'assimilation de données, sont supposées constantes dans le temps.

Le Filtre de Kalman

Le Filtre de Kalman (KF pour Kalman Filter en anglais) introduit par Kalman en 1960 peut être appréhendé comme une extension de la méthode d'Interpolation Statistique pour laquelle l'assimilation des observations est réalisée de manière continue. En effet, le Filtre de Kalman inclut un modèle d'évolution temporelle de l'état du système entre deux instants t_i et t_{i+1} . Ainsi, contrairement à l'Interpolation Statistique, la matrice de covariance d'erreur du modèle suit une loi d'évolution temporelle.

On distingue deux phases distinctes dans le Filtre de Kalman :

- la phase de prédiction utilise l'état estimé de l'instant précédent pour produire une estimation de l'état courant.
- la phase de mise à jour (ou d'analyse) utilise les observations de l'instant courant pour corriger l'état prédit dans le but d'obtenir une estimation plus précise.

Le Filtre de Kalman a été initialement développé pour assimiler des observations de manière continue dans le cas de systèmes linéaires. Bien que cette méthode présente l'avantage de faire évoluer les covariances d'erreur de prévision, elle ne peut pas être directement appliquée à des systèmes non linéaires tels que les modèles météorologiques ou océanographiques, ou encore de qualité de l'air. Afin de pallier ce problème, le Filtre de Kalman peut être généralisé en considérant des opérateurs non linéaires dans l'algorithme d'assimilation (Jaswinski, 1970). On parle alors du Filtre de Kalman étendu. Les opérateurs sont linéarisés au voisinage de la variable à analyser. Cependant dans le cas de grands systèmes atmosphériques qui présentent des non linéarités très importantes et surtout un vecteur d'état x de grande dimension, cette méthode est très coûteuse en temps de calcul et ne peut pas être utilisée pour la prévision opérationnelle. Le seul moyen d'utiliser le Filtre de Kalman sur des systèmes réels non linéaires est d'utiliser soit des schémas sous-optimaux qui sont des formes dégradées du filtre soit une méthode stochastique plus générale (qui est également sous optimale) telle que le Filtre de Kalman d'Ensemble (EnKF pour Ensemble Kalman Filter en anglais) (Coman, 2008).

Le Filtre de Kalman d'Ensemble

Le Filtre de Kalman d'Ensemble a été proposé par Evensen (1994), et repris par Burgers et al. (1998). Une description détaillée de cette méthode est donnée dans Evensen

(2003). Cette méthode a d'abord été présentée comme une alternative stochastique au filtre de Kalman étendu qui est déterministe. L'EnKF repose sur une méthode de Monte Carlo qui permet de résoudre les deux principaux problèmes du Filtre de Kalman étendu dans le cadre de systèmes de grande taille : le coût de calculs très important et la mauvaise réponse en cas de forte non-linéarité (Evensen, 1992).

Le principe du Filtre de Kalman d'Ensemble consiste à utiliser un ensemble de vecteurs d'états obtenus en perturbant le vecteur état initial, et à calculer une covariance d'erreur du modèle à partir de cet ensemble. La moyenne de cet ensemble représente la meilleure estimation et la (co)variance de l'ensemble représente la (co)variance de l'erreur d'estimation. A chaque pas d'analyse, chaque membre de l'ensemble est corrigé à l'aide du jeu d'observations disponibles.

1.5 Motivations de la thèse

L'ozone est un polluant réglementé en raison de son impact sanitaire et fait donc l'objet d'une surveillance particulière. Aujourd'hui la prévision de l'ozone à l'échelle européenne est effectuée de façon opérationnelle dans le cadre du système PREV'AIR, en s'appuyant notamment sur le modèle CHIMERE et ce, avec une bonne qualité. Néanmoins, en termes de taux de réussite de prévisions des dépassements des pics de pollution de l'ozone, les résultats sont plus mitigés : un peu plus de la moitié des dépassements sont bien prédits ou analysés. Afin de réduire les incertitudes dans les modèles, une approche consiste à corriger les champs d'ozone *a posteriori*, via une méthode dite d'assimilation de données.

Les observations actuellement assimilées dans les modèles sont seulement celles de surface fournies par les réseaux de mesure, notamment pour l'ozone. Cependant Blond et al. (2004) ont montré que les observations de surface sont insuffisantes pour pouvoir apporter des corrections au-delà de la journée. L'idée est donc de se tourner vers les observations satellitaires et en particulier vers les sondeurs IR de dernière génération qui semblent pouvoir aider à la prévision des épisodes de pollution. D'après de récents travaux, il semble assez clair que l'assimilation des observations satellitaires présente un apport dans la troposphère libre mais une incertitude subsiste toutefois dans la couche limite (Parrington et al., 2009). **Dans ce contexte, l'objectif de mes travaux de thèse porte sur l'exploitation des observations satellitaires d'ozone troposphérique fournies par l'instrument IASI en vue de l'assimilation dans le modèle CHIMERE afin d'améliorer les champs d'ozone simulés et *a posteriori* les prévisions de la qualité de l'air.**

Mes travaux de thèse se divisent en deux parties. Un premier volet porte sur les restitutions des concentrations d'ozone à partir des mesures IASI ainsi que sur la validation des produits d'ozone obtenus. En particulier, les observations fournies par d'autres instruments satellitaires, *in situ* et par des ballons sonde ont été utilisées pour la validation des inversions IASI. Cette étape est essentielle avant toute introduction des données dans un modèle. Par ailleurs, un système d'assimilation de données basé sur le Filtre de Kalman d'Ensemble est en cours de développement au LISA (Coman, 2008) pour l'assimilation des observations satellitaires à l'échelle de l'Europe. Cette méthode a été choisie car elle permet une mise à jour de la covariance d'erreur du modèle à chaque pas de temps. Un des

enjeux de l'assimilation basée sur l'EnKF est de réussir à construire un ensemble "physique" afin que la matrice de covariance représente la bonne incertitude du modèle. Le second volet de ces travaux de thèse porte sur un travail préparatoire à l'assimilation des données IASI dans CHIMERE, notamment sur la construction de l'ensemble.

Dans ce manuscrit, nous rappelons dans le chapitre 2 les principaux processus physiques et chimiques qui régissent la composition de l'atmosphère. Ce chapitre est en particulier orienté sur la distribution spatio-temporelle de l'ozone dans la troposphère. Une brève description du modèle de chimie-transport CHIMERE qui est utilisé au cours de cette thèse y est également présentée. Le chapitre 3 introduit les principes de la télédétection spatiale au nadir dans le domaine de l'infrarouge. Nous y présentons quelques notions sur le contraste thermique qui est un paramètre critique pour l'observation de la couche limite, c'est-à-dire la couche directement adjacente à la surface de la Terre et donc touchée par les phénomènes de pollution. Le chapitre expose ensuite les problèmes d'inversion de données atmosphériques à partir du rayonnement mesuré par les instruments spatiaux. La dernière partie de ce chapitre est dédiée à la description de l'instrument IASI dont les observations sont utilisées tout au long de cette thèse.

Les chapitres 4, 5 et 6 présentent les résultats obtenus au cours de ces travaux de thèse. Le chapitre 4 introduit les deux algorithmes d'inversion utilisés dans ce travail permettant de restituer les concentrations d'ozone à partir des mesures IASI :

- le réseau de neurones développé au Laboratoire, Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales (LATMOS) (Turquety et al., 2004) permettant d'accéder à la colonne totale;
- *Atmosphit*, développé par Daniel Hurtmans et Pierre-François Coheur à l'Université Libre de Bruxelles (ULB), donnant accès au profil vertical d'ozone et ainsi à des colonnes partielles, notamment dans la troposphère.

Nous terminons ce chapitre par une étude de cas montrant le potentiel de IASI à capturer les échanges entre la stratosphère et la troposphère. La validation des inversions IASI est présentée dans le chapitre 5. Les colonnes totales d'ozone inversées sont comparées à l'ozone fourni par les instruments GOME-2 / MetOp-A et ceux du réseau Dobson et Brewer mesurant dans le domaine de l'UV-vis (Boynard et al., 2009) ainsi que par les instruments AIRS / Aqua et TES / Aura mesurant dans le domaine de l'IR. Les colonnes partielles d'ozone dans la troposphère sont, elles, comparées avec l'ozone fourni par des sondes d'ozone (Boynard et al., 2009). Cette première partie, essentielle pour toute utilisation optimale des données IASI, a montré le potentiel de l'instrument à mesurer l'ozone, notamment dans la basse troposphère, ce qui est nécessaire pour l'étude de la pollution. Le chapitre 6 présente un travail préparatoire à l'assimilation des données IASI dans le modèle CHIMERE, utilisant la méthode EnKF. Une première partie du travail consiste en une étude de sensibilité du modèle CHIMERE à ses paramètres d'entrée. Cette étude permet d'identifier les paramètres auxquels l'ozone est le plus sensible et qui seront perturbés lors de la mise en œuvre de l'ensemble. La deuxième partie de ce travail porte sur la construction de l'ensemble ainsi que de son évaluation par comparaison aux observations disponibles, les données du programme MOZAIC (profils verticaux) et la base de données européenne de la qualité de l'air AIRBASE (données de surface).

Enfin le dernier chapitre conclut ce travail et ouvre des perspectives sur de futurs travaux.

Chapitre 2

Dynamique et chimie de l'ozone troposphérique

L'ozone est un gaz naturellement présent dans notre atmosphère qui a été découvert par Schönbein (1840) lors d'expériences en laboratoire. Sa composition chimique consistant en 3 atomes d'oxygène (O_3) a été découverte plus tard en 1865. Le mot "ozone" provient du mot grec οζειν (ozein en latin), ce qui signifie "qui sent". L'ozone a une odeur caractéristique qui permet de le détecter même à très faibles quantités.

Bien que l'ozone soit présent dans l'atmosphère en très faibles quantités, sa présence est cependant vitale pour l'être humain. La plupart de l'ozone atmosphérique (90%) réside dans la basse stratosphère qui est communément connue sous le nom de la "couche d'ozone". L'ozone restant, environ 10% est situé dans la troposphère. Sa distribution verticale est illustrée sur la figure 2.1

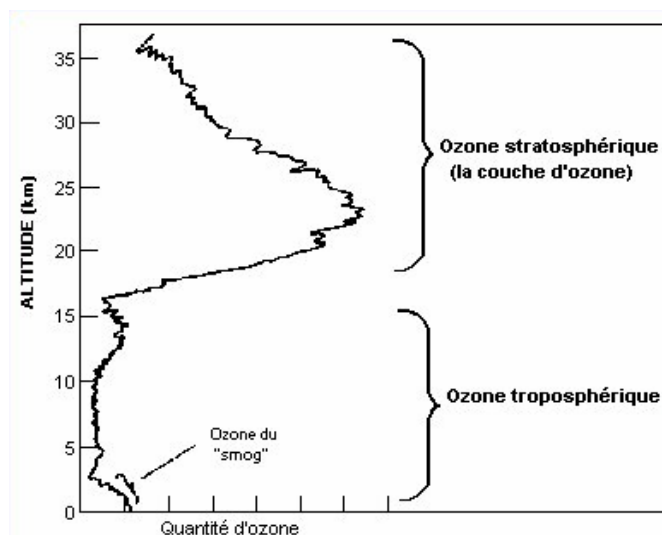


Fig. 2.1 - Distribution verticale de l'ozone dans l'atmosphère.

L'ozone stratosphérique absorbe le rayonnement solaire ultra-violet (UV-B), nocif pour l'être humain et autres formes de vie. S'il n'était pas absorbé, le rayonnement UV atteindrait la surface de la Terre en quantités dangereuses pour la vie humaine, animale et végétale. L'absorption du rayonnement UV par l'ozone est une source de chauffage dans la stratosphère, ce qui permet de maintenir la stratosphère stable, avec des températures potentielles¹ qui augmentent fortement avec l'altitude. L'ozone joue donc un rôle clé en contrôlant la température dans l'atmosphère. Grâce à son rôle bénéfique, l'ozone stratosphérique est donc considéré comme le "bon" ozone.

Au milieu des années 1970, il a été découvert que certains gaz chimiques produits par l'homme, tels que les CFCs, pouvaient détruire l'ozone stratosphérique et réduire la couche d'ozone (Molina et Rowland, 1974), ce qui entraîne une augmentation du rayonnement UV à la surface de la Terre. Des efforts globaux ont été entrepris afin de protéger la couche d'ozone en établissant une réglementation sur les produits chimiques à l'origine de la diminution de l'ozone. En effet, les scientifiques ont identifié une diminution drastique d'ozone pendant le printemps au-dessus de l'Antarctique (Farman et al., 1985; WMO, 1999). La perte d'ozone dans cette région a été communément appelée le "trou d'ozone" à cause de l'importance - quasi-totale à certains endroits et moments - de la diminution de l'ozone. Outre ce phénomène saisonnier, une diminution continue de la couche d'ozone a également été observée au-dessus d'autres régions du globe, telles que l'Arctique et dans une moindre mesure, les moyennes latitudes nord (Fahey, 2003).

Constituant seulement 10% de la masse totale de l'ozone dans l'atmosphère, l'ozone troposphérique représente un des constituants clés dans les changements du climat à l'échelle globale (Gauss et al., 2003, 2006) et de la qualité de l'air (Akimoto, 2003). Bien qu'il soit présent dans l'atmosphère seulement à l'état de trace, il joue un rôle important dans le bilan radiatif en tant que principal gaz à effet de serre après la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone et le méthane. Il joue également un rôle déterminant dans le pouvoir oxydant de l'atmosphère. En effet l'ozone et son dérivé photochimique OH sont les principaux oxydants pour la plupart des gaz réduits. En absence d'ozone, les gaz réduits tels que le monoxyde de carbone, les COV et la majorité des composés azotés et sulfureux s'accumuleraient et atteindraient des niveaux élevés par rapport aux niveaux actuellement présents dans l'atmosphère. Par ailleurs, à cause de ses effets nuisibles sur la santé humaine et celle de la végétation, l'ozone à la surface est considéré comme un des principaux polluants de l'atmosphère.

Depuis les années 1980, la distribution de l'ozone dans la troposphère a constamment évolué, notamment à l'échelle régionale (Oltmans et al., 2006). La présence de l'ozone dans la troposphère a d'abord été attribuée à des transferts dynamiques de masses d'air entre la stratosphère et la troposphère (Junge, 1962). C'est seulement au début des années soixante-dix qu'il a été montré, théoriquement, que la production photochimique est d'une importance considérable par rapport au transport (Chameides et Walker, 1973; Crutzen, 1973). L'importance de cette production photochimique a été corroborée dans de nombreux travaux (Roelofs et Lelieveld, 1997; Li et al., 2002; von Kuhlmann et al., 2003) et récemment, a été estimée à 77% des sources (Sudo et al., 2007).

¹ La température potentielle correspond à la température qu'aurait une masse d'air si elle était ramenée adiabatiquement à une pression de 1000 hPa (voir Annexe C pour son expression théorique).

Ce chapitre a pour but de décrire les différents processus à l'origine de la distribution de l'ozone troposphérique. Après avoir rappelé la structure verticale de l'atmosphère, nous exposerons les processus dynamiques de transport régissant la troposphère, en particulier les processus liés à la circulation générale, aux transferts des masses d'air entre la stratosphère et la troposphère et aux instabilités dites baroclines et convectives. Nous présentons ensuite les processus chimiques de production et de destruction de l'ozone se produisant dans la troposphère ainsi que les sources et puits des principaux précurseurs de l'ozone. Enfin, la dernière partie de ce chapitre est dédiée à la description du modèle tridimensionnel de chimie-transport CHIMERE (Schmidt et al., 2001; Vautard et al., 2001) qui a été développé notamment pour les simulations et prévisions de la qualité de l'air et qui sera utilisé au cours de cette thèse.

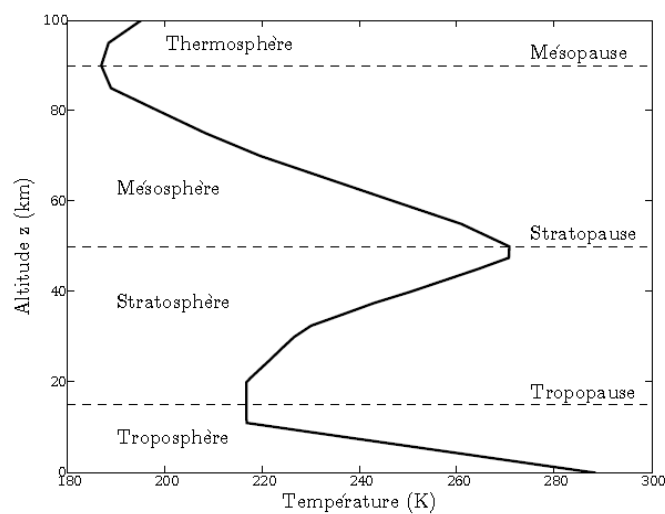


Fig. 2.2 - Structure verticale de l'atmosphère (atmosphère standard USA 1976). D'après Sportisse (2008)

2.1 Structure verticale de l'atmosphère

La structure verticale de l'atmosphère est essentiellement caractérisée par le profil vertical de température (figure 2.2). On peut ainsi distinguer plusieurs domaines d'altitude selon le signe du gradient vertical de température.

La première couche rencontrée au niveau du sol est la troposphère. Elle s'étend jusqu'à la tropopause, sa limite supérieure, dont l'altitude varie selon la saison entre 7 et 9 km au-dessus des pôles et entre 15 à 18 km au niveau de l'équateur. Dans cette couche atmosphérique, la température décroît linéairement avec l'altitude en raison de la dissipation du rayonnement infrarouge émis par la surface de la Terre qui est la principale source de chaleur à ces altitudes. Cette couche est caractérisée par un gradient thermique moyen de $6.5\text{ }^{\circ}\text{C/km}$.

La partie de la troposphère directement soumise à l'influence de la surface de la Terre est appelée couche limite atmosphérique (CLA, PBL pour Planetary Boundary Layer en

anglais). Cette couche d'atmosphère est comprise entre la surface et 1.5 km d'altitude en moyenne mais son épaisseur peut varier entre 500 m et 3 km selon les conditions météorologiques. Cette couche est souvent caractérisée par un profil de température potentielle instable près de la surface et neutre au-dessus, ce qui permet le mélange vertical. Son étude est très importante dans le domaine de la qualité de l'air puisque c'est dans cette couche qu'ont lieu les phénomènes de pollution. Au-dessus de la couche limite se trouve ce que l'on appelle la troposphère libre. La troposphère est, en moyenne, stable en termes de température potentielle, mais peut être instable localement (par exemple la convection profonde).

Située juste au-dessus de la troposphère, la seconde couche est la stratosphère qui s'étend jusqu'à la stratopause à une altitude d'environ 50 km. Cette couche est caractérisée par une augmentation de la température avec l'altitude, qui est fortement liée à la présence, entre 15 et 30 km, de fortes concentrations d'ozone, principal absorbant de rayonnement UV dans la stratosphère.

On peut décomposer la stratosphère en deux zones : une zone isotherme située dans la basse stratosphère et une zone caractérisée par une température augmentant avec l'altitude située entre 30 et 50 km, ce qui rend cette région très stable.

Enfin, juste au-dessus de la stratosphère se trouve la mésosphère dans laquelle la température décroît de nouveau avec l'altitude, en raison, non pas de la présence de l'ozone, mais de celle de l'oxygène moléculaire qui absorbe le rayonnement UV (pas suffisamment malgré tout pour compenser les pertes d'énergie sous forme de rayonnement thermique). La mésosphère et les couches situées au-dessus ne représentent qu'une très faible partie de la masse atmosphérique.

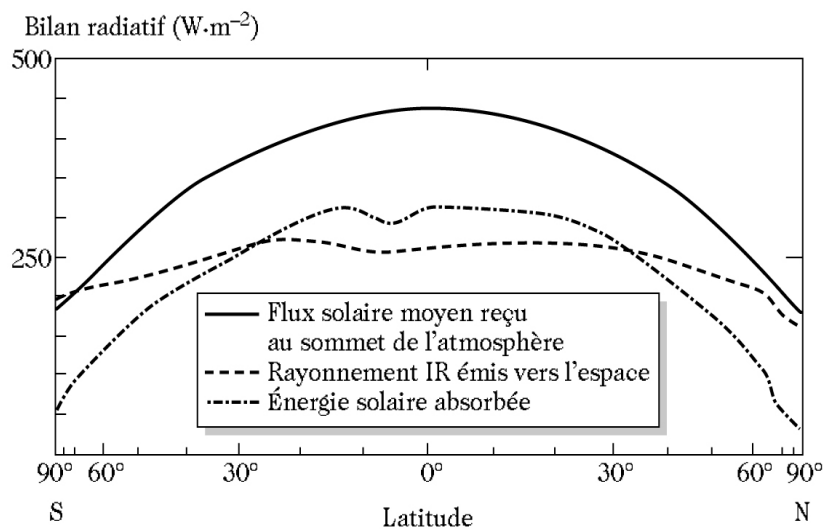


Fig. 2.3 - Bilan radiatif du système terre-atmosphère, intégré sur les longitudes et le temps (moyenne annuelle). Echelle horizontale linéaire en sinus de la latitude. D'après Delmas (2005)

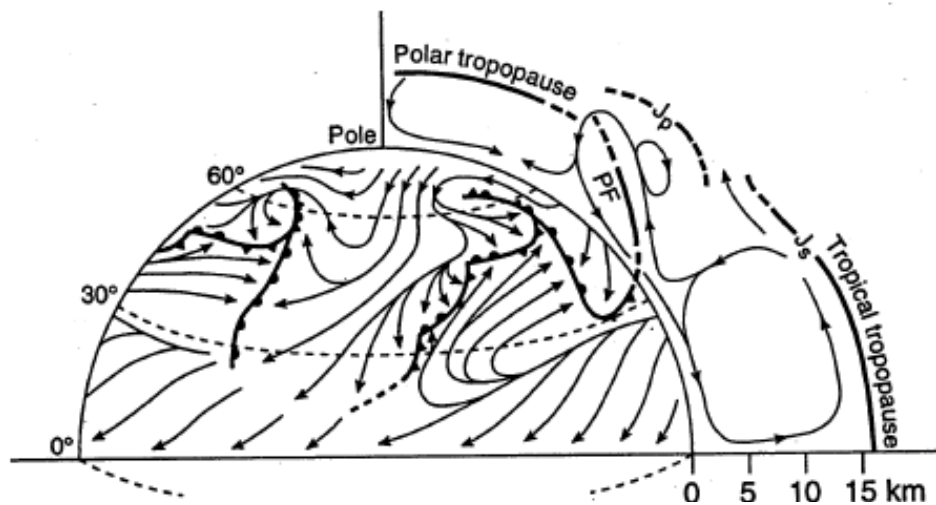


Fig. 2.4 - Schéma idéalisé de la circulation générale dans la troposphère. Les vents de surface typiques de l'hémisphère nord sont représentés par des flèches. Les fronts froids sont représentés par des lignes épaisses avec des triangles et les fronts chauds par des lignes épaisses avec des demi-cercles. Sur la partie de droite, la circulation est représentée dans un plan latitude-altitude avec la tropopause polaire, tropicale, le front polaire (PF pour Polar Front en anglais), le jet-stream polaire (J_p) et le jet stream subtropical (J_s). D'après Brasseur (1999)

2.2 Dynamique de la troposphère

L'objectif de cette partie est de donner un aperçu des principaux processus dynamiques responsables de la répartition spatio-temporelle de l'ozone dans la troposphère. Après une description de la circulation générale de la troposphère, nous présentons les processus d'échange verticaux de masses d'air, d'une part, entre la troposphère et la stratosphère, et d'autre part, entre la couche limite atmosphérique, directement affectée par les phénomènes se produisant en surface, et la troposphère libre.

2.2.1 Circulation générale troposphérique

Les deux processus fondamentaux à l'origine de la circulation atmosphérique à l'échelle globale sont le réchauffement de la surface de la Terre par le rayonnement solaire et la force de Coriolis.

Bien qu'il y ait un équilibre entre l'énergie totale solaire reçue par la surface de la Terre et l'énergie totale réémise vers l'espace, cet équilibre ne se trouve pas dans toutes les régions du globe. En effet, les tropiques reçoivent beaucoup plus d'énergie solaire qu'elles n'en réémettent alors que c'est le contraire dans les régions polaires. La figure 2.3 représente les moyennes zonales et annuelles du flux solaire reçu absorbé et infrarouge réémis par la surface de la Terre. Un excès d'énergie radiative est observé au niveau des tropiques alors qu'un déficit de chaleur apparaît dans les régions polaires. Afin de rétablir l'équilibre entre ces régions, un transfert de chaleur des tropiques vers les pôles est nécessaire. Ce transfert se fait principalement via la circulation générale atmosphérique qui

a lieu essentiellement dans la troposphère et qui est caractérisée par des cellules. Les masses d'air chaud montent au niveau des tropiques, se dirigent ensuite vers les régions polaires, où refroidies, connaissent une zone de subsidence, avant de repartir vers les basses latitudes. Au final, la circulation atmosphérique s'organise non pas en une seule cellule géante qui serait instable mais en trois cellules dans chacun des hémisphères, comme l'illustre la figure 2.4. Dans l'hémisphère nord, la circulation est caractérisée par une cellule directe jusqu'à 30° (cellule de Hadley), une cellule indirecte entre 30 et 60° (cellule de Ferrel) et une cellule polaire directe au-dessus de 60°. La circulation se fait symétriquement dans l'hémisphère sud avec une différence liée à l'emplacement des continents.

Du fait de la force de Coriolis, les flux d'air dans les trois cellules sont déviés vers la droite dans l'hémisphère nord et vers la gauche dans l'hémisphère sud. On trouve ainsi des vents de surface ayant des directions caractéristiques dans chaque hémisphère : des vents d'est dans les tropiques, des vents d'ouest aux moyennes latitudes et des vents d'est dans les régions polaires. Ces flux d'air sont également influencés par l'action thermique des continents, créant des zones alternées de basses pressions (dépressions) et de hautes pressions (anticyclones).

Les tropiques sont caractérisés par une importante zone de convergence des masses d'air chaud et humide, appelée Zone de Convergence Inter-Tropicale (ZCIT ou en anglais ITCZ pour Inter-Tropical Convergence Zone). La ZCIT n'est pas une bande stable : elle se déplace en fonction des saisons et par rapport aux régions géographiques. Elle peut se déplacer de plus de 1000 km entre l'été et l'hiver. Au-dessus des zones africaines et indiennes, la ZCIT possède une forte fluctuation à cause du relief principalement. En revanche, en zone pacifique et atlantique, elle reste relativement stable (zone océanique). C'est une zone de rencontre entre les vents chauds de surface (appelés alizés) des deux hémisphères.

Les moyennes et hautes latitudes sont également caractérisées par une zone de convergence des masses d'air aux caractéristiques différentes du fait de leur origine distincte, appelée communément front. En particulier, dans les régions polaires, la rencontre des masses d'air chaud d'origine tropicale et des masses d'air d'origine polaire forme le front polaire. Tout comme la ZCIT, le front polaire n'est pas une ligne continue. Sa forme dépend des gradients de pression entre les continents et les océans, et se déplace selon la situation synoptique.

Ce schéma de circulation atmosphérique générale est influencé par d'autres facteurs tels que la circulation générale océanique, ainsi que les hétérogénéités de la surface de la Terre (répartition entre les océans et les continents, par la présence de relief).

2.2.2 Circulation générale de la stratosphère

La stratosphère est très différente de la troposphère. Premièrement, sa source de chaleur est située à l'intérieur de la couche d'ozone alors que celle de la troposphère est la surface de la Terre (Delmas, 2005). Deuxièmement, elle est caractérisée par une stratification, beaucoup plus importante que celle de la troposphère, qui inhibe les mouvements verticaux. Alors que les mouvements horizontaux peuvent être très rapides, l'amplitude des mouvements verticaux est très faible. Cette stratification rend ainsi plus lente la dispersion des polluants émis à la surface vers la couche d'ozone. Par ailleurs, cette

région de l'atmosphère est pauvre en vapeur d'eau en raison des températures très froides au niveau de la tropopause, contrairement à la troposphère qui en contient la quasi totalité.

La basse stratosphère est caractérisée par un gradient de température allant des tropiques aux pôles alors que les couches situées au-dessus de 30 hPa (~25-30 km) sont caractérisées par un gradient de température allant du pôle d'été au pôle d'hiver. Ainsi la circulation méridienne s'organise en une grande cellule unique de chaque côté de l'équateur dans la basse stratosphère, caractérisée par une zone d'ascendance aux tropiques prolongeant la cellule de Hadley dans la troposphère et une zone de subsidence au niveau des pôles (on parle de circulation de Brewer-Dobson), alors qu'elle n'est caractérisée que par une seule cellule dans la haute stratosphère allant du pôle d'été au pôle d'hiver.

La circulation moyenne zonale de la stratosphère est caractérisée par un cycle saisonnier aux moyennes et hautes latitudes avec d'importantes asymétries interhémisphériques. Dans l'hémisphère d'hiver, le réchauffement dû au rayonnement solaire est nul au niveau des pôles, on a par conséquent un fort gradient de température entre les moyennes latitudes qui sont éclairées et donc chauffées, et les hautes latitudes qui sont plongées dans la nuit polaire (au-dessus de 66°N). D'après la relation du vent thermique, le gradient méridien de température est associé à un fort cisaillement vertical de vent zonal, ce qui conduit à la formation d'un jet au-dessus de 50 hPa (jet zonal d'ouest) qui tourne autour d'une zone de basses pressions relativement isolée et centrée sur le pôle, qu'on appelle le vortex. En général ce jet est déformé dans l'hémisphère nord et n'est pas centré au-dessus du pôle du fait de la distribution des continents, ce qui permet l'échange de masses d'air avec les moyennes latitudes. En revanche, le pôle sud est caractérisé par un plus faible contraste océan-continent. Le vortex y est donc plus intense et centré au-dessus du pôle (Delmas, 2005).

2.2.3 Echanges verticaux stratosphère-troposphère

Bien que la tropopause constitue une barrière pour les mouvements troposphériques, il existe des échanges verticaux de masses d'air à travers la tropopause, entre la stratosphère et la troposphère. Ces échanges modifient considérablement les profils verticaux des espèces atmosphériques et provoquent des effets radiatifs et dynamiques ayant un impact sur les températures de la basse stratosphère ainsi que sur la hauteur de la tropopause.

La coupe latitudinale des processus d'échanges verticaux illustrée sur la figure 2.5 met en évidence la circulation de Brewer-Dobson dans la basse stratosphère. Cette circulation résulte essentiellement du forçage, dans la stratosphère d'hiver, d'ondes d'origine troposphérique, appelées ondes de Rossby (Holton et al., 1995). Du fait de l'importance du déferlement des ondes de Rossby dans l'hémisphère nord (en raison de l'alternance des masses d'air continental), les échanges stratosphère-troposphère sont plus importants aux hautes et moyennes latitudes de l'hémisphère nord et en hiver. Par ailleurs ce processus d'échange vertical est provoqué par les changements de saison des masses d'air de la basse stratosphère, du fait d'une remontée de la tropopause. Ces deux effets conduisent à un transport maximal à la fin de l'hiver et au début du printemps de la stratosphère vers la troposphère.

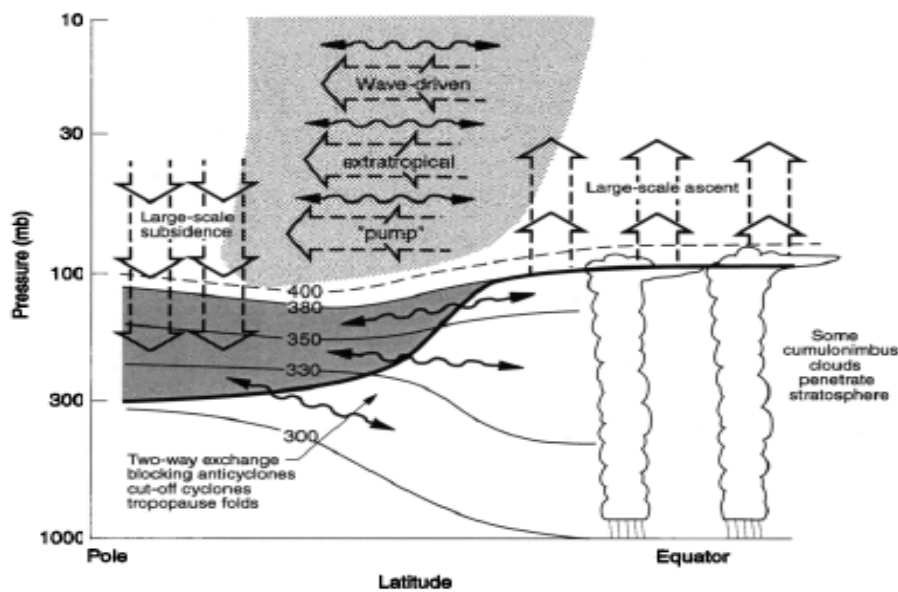


Fig. 2.5 - Schématisation des processus dynamiques d'échange entre la stratosphère et la troposphère. La tropopause est représentée par la ligne épaisse. Les lignes fines représentent les surfaces isentropes c'est-à-dire de température potentielle constante en Kelvin. La basse stratosphère, représentée en gris foncé, est la région dans laquelle les surfaces isentropes rencontrent la tropopause et les échanges entre la stratosphère et la troposphère, comme la foliation de la tropopause, se produisent. Dans la région située au-dessus de la surface isentrope à 380 K, dite "overword", les surfaces isentropes restent entièrement dans la stratosphère. La région en gris clair révèle un forçage causé par des ondes (le "pompage" extratropical). D'après Holton et al. (1995)

Le transport vertical à travers la tropopause peut se faire épisodiquement lors de processus méso-échelle, par exemple lors de foliations de tropopause (voir Annexe C) liées à l'activité frontale.

2.2.4 Instabilité convective et barocline

On peut distinguer deux mécanismes importants entraînant des mouvements verticaux dans la troposphère : l'instabilité barocline qui est fortement liée à l'activité frontale dans la troposphère et l'instabilité convective qui est un processus encore plus local.

Instabilité barocline

L'instabilité barocline est liée à un gradient horizontal, initialement latitudinal, de température, qui, dû à un excès de chaleur au niveau des tropiques par rapport aux pôles, modifie la circulation des masses d'air afin de rétablir l'équilibre en transportant l'excès d'énergie depuis les régions excédentaires vers les régions déficitaires (c.f. section 2.2.1). L'instabilité barocline permet le développement d'ondes atmosphériques, principalement dans le flux d'ouest aux moyennes latitudes des deux hémisphères.

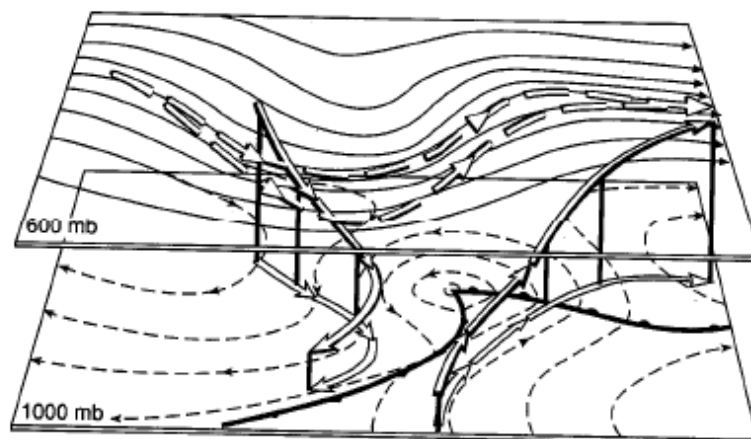


Fig. 2.6 - Schéma de la circulation des masses d'air par rapport aux perturbations baroclines aux moyennes latitudes. D'après Brasseur (1999)

Une schématisation de la circulation associée à des perturbations baroclines est présentée sur la figure 2.6. Le flux horizontal de la moyenne troposphère est une perturbation en forme d'onde alors que la circulation à la surface forme des centres de basses pressions avec des fronts chauds et froids associés. L'advection des masses d'air est caractérisée par des mouvements de subsidence en arrière des fronts froids de surface et des mouvements d'ascendance derrière les fronts chauds. Ces mouvements de subsidence peuvent à certaines occasions advecier des masses d'air de la basse stratosphère vers la moyenne troposphère, et constituer ainsi un mécanisme efficace d'échanges entre la stratosphère et la troposphère. Ils sont liés à une apparente foliation de la tropopause (en termes de vorticité potentielle).

Instabilité convective

La structure thermique de la troposphère est largement déterminée par un équilibre entre le forçage radiatif et la convection. La surface de la Terre présente une capacité d'absorption du rayonnement solaire UV beaucoup plus importante que l'atmosphère. L'instabilité de la troposphère résulte principalement du réchauffement des couches proches de la surface et du refroidissement radiatif des plus hautes couches. L'équilibre de la troposphère est alors rétabli lors de processus de convection provoquant des mouvements verticaux. Ainsi une parcelle d'air chauffée devient plus chaude que son environnement et donc plus légère, et s'élèvera. Lors du mouvement ascendant, la pression diminue, et donc la masse d'air se détend et se refroidit. Le mouvement ascendant continue jusqu'à ce que la température de la parcelle d'air ait atteint celle de l'air environnant. Si la masse d'air est plus froide que l'air environnant, elle va subir une compression et un réchauffement lors de son mouvement de subsidence. La convection est fortement accentuée par la présence de la vapeur d'eau. En effet, lors de l'ascendance d'une masse d'air humide, il y a condensation de la vapeur d'eau qui libère de la chaleur latente. La température de la masse d'air se refroidit alors plus lentement et monte plus haut. Dans ce dernier cas, il se forme des nuages, appelés nuages convectifs.

La convection se produit typiquement sur des échelles spatiales de quelques kilomètres carrés et peut s'étendre de la surface de la Terre à la tropopause et au-delà (cas de la convection profonde). Généralement la convection est caractérisée par des petites régions de mouvements ascendants et des plus grandes régions de mouvements de subsidence de compensation.

2.2.5 La couche limite atmosphérique

La couche limite atmosphérique (CLA) est la couche directement affectée par la surface de la Terre (Stull, 1988). En effet cette dernière joue un rôle fondamental dans les processus de frottements, en tant que source et puits de vapeur d'eau et de chaleur ainsi qu'en tant qu'absorbeur et émetteur d'un grand nombre de constituants traces atmosphériques. L'épaisseur de la CLA, liée à la structure de l'atmosphère et aux flux de chaleur et de vapeur d'eau à la surface, peut varier, typiquement, de quelques centaines de mètres à quelques kilomètres; au sommet, des nuages peuvent apparaître.

Le réchauffement de la surface continentale induit un gradient vertical de température potentielle négatif. Par ailleurs, les frottements à la surface provoquent un cisaillement vertical du vent. Ces deux effets créent une turbulence respectivement convective et mécanique. La turbulence convective est en fait organisée en cellules convectives, avec des cellules thermiques ascendantes compensées par des mouvements subsidents. Les mouvements turbulents dans la CLA engendrent un transfert de chaleur et de constituants chimiques depuis la surface, conduisant à une homogénéisation rapide des constituants de la CLA.

Le sommet de la CLA est caractérisé par une couche de forte stabilité statique, (gradient de température potentielle positif - on parle alors d'inversion de température), diminuant significativement les mouvements verticaux turbulents et constituant donc une barrière pour le transport des espèces émises dans la CLA vers la troposphère libre.

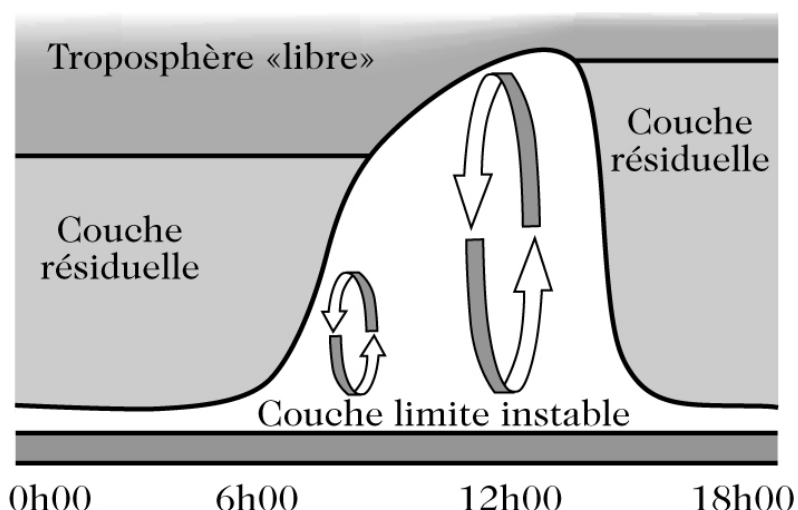


Fig. 2.7 - Schématisation de l'évolution temporelle diurne typique de la couche limite. D'après Delmas (2005)

La CLA présente un cycle diurne régulier, lié au lever et au coucher du Soleil. Cependant ce cycle peut être déstabilisé par certaines situations météorologiques, telles que la présence de masses d'air très instables provoquant des perturbations dans toute la troposphère et pouvant faire disparaître la couche limite au profit d'une turbulence généralisée (Delmas, 2005). La figure 2.7 illustre un schéma de l'évolution de la couche limite lors d'une journée ensoleillée d'été sur une région continentale située aux moyennes latitudes. Pendant la nuit, la Terre se refroidit en émettant un rayonnement infrarouge (c.f. chapitre 3) alors qu'aucun rayonnement solaire n'est reçu. La température de la surface de la Terre est donc plus faible que celle de l'air situé dans les couches supérieures, directement attenantes. L'air situé près de la surface se refroidit et la couche limite devient stable. Mais lorsque le Soleil se lève, la surface est de plus en plus fortement chauffée, les cellules thermiques se développent alors de plus en plus et pénètrent plus profondément dans l'atmosphère. Quelques temps avant le coucher du Soleil, une couche stable se forme de nouveau à la surface. Au dessus, une couche légèrement stable se forme (couche résiduelle) à partir de l'ancienne couche limite convective.

L'échange de masses d'air entre la CLA et la troposphère libre se produit typiquement sur des échelles de temps allant de quelques heures à quelques jours, en supposant des vitesses d'entraînement de l'ordre de $0.01\text{-}0.02\text{ m.s}^{-1}$ dans la couche limite (Stull, 1988) et des profondeurs typiques allant de 100 m à 3 km. Cependant, lors d'importants mouvements de convection, la couche limite peut être entièrement déchargée en moins d'une heure (Brasseur, 1999).

2.2.6 Temps caractéristiques du transport dans la troposphère

Les vents zonaux sont typiquement de l'ordre de 10 m.s^{-1} . Ainsi pour une bande de latitude donnée, les masses d'air font le tour de la Terre en quelques semaines. Le transport méridien est plus lent. En effet les vents méridiens sont de l'ordre de 1 m.s^{-1} et il faut environ 1 à 2 mois pour que l'air des moyennes latitudes parvienne dans les régions polaires ou tropicales. Le transport interhémisphérique est encore plus lent, avec des constantes de temps de l'ordre de l'année (Delmas, 2005).

Le mélange vertical des masses d'air entre la surface et la tropopause s'effectue en moyenne en un mois. Ainsi les constituants chimiques ayant une durée de vie supérieure à un mois seront bien mélangés verticalement alors que ceux dont la durée de vie est plus courte auront tendance à avoir un fort gradient vertical (Delmas, 2005). Le mélange avec la couche limite de surface est de l'ordre de la journée alors que dans la troposphère libre, vers 5 km, il faut compter environ une semaine. Les échanges entre la troposphère et la stratosphère sont beaucoup plus lents en raison de la stratification de la stratosphère.

Le transport depuis la troposphère vers la stratosphère est de l'ordre de 5 à 10 ans et a lieu principalement dans les tropiques alors que l'air stratosphérique met environ 1 à 2 ans pour passer dans la troposphère, ce processus ayant lieu essentiellement aux moyennes latitudes. Ces processus d'échanges verticaux de masses d'air entre la stratosphère et la troposphère provoquent d'importantes modifications dans les profils verticaux des espèces chimiques, comme nous allons le présenter dans la suite. Le tableau 2.1 résume l'ordre de grandeur des différentes échelles de temps du transport horizontal et vertical dans la troposphère.

Tab. 2.1 - Echelles de temps caractéristiques du transport troposphérique.

Transport	Caractéristiques
Continental	1 semaine
Intercontinental	2 semaines
Hémisphérique	1 mois
Interhémisphérique	1 année
Couche limite atmosphérique	1 heure à 1 jour
Troposphère libre	1 semaine
Troposphère	1 mois
Echange troposphère-stratosphère	5 à 10 ans
Echange stratosphère-troposphère	1 à 2 ans

2.3 Mécanismes de production et de destruction de l'ozone troposphérique

La distribution spatio-temporelle de l'ozone et de ses précurseurs dans la troposphère est régie par quatre principaux processus (Académie des sciences, 1993) (figure 2.2) :

- la production photochimique dans la troposphère qui résulte de l'oxydation du monoxyde de carbone et des hydrocarbures en présence d'oxydes d'azote;
- la destruction photochimique dans la troposphère;
- les échanges des masses d'air entre la stratosphère et la troposphère par mélange vertical et horizontal;
- Le dépôt sec au sol.

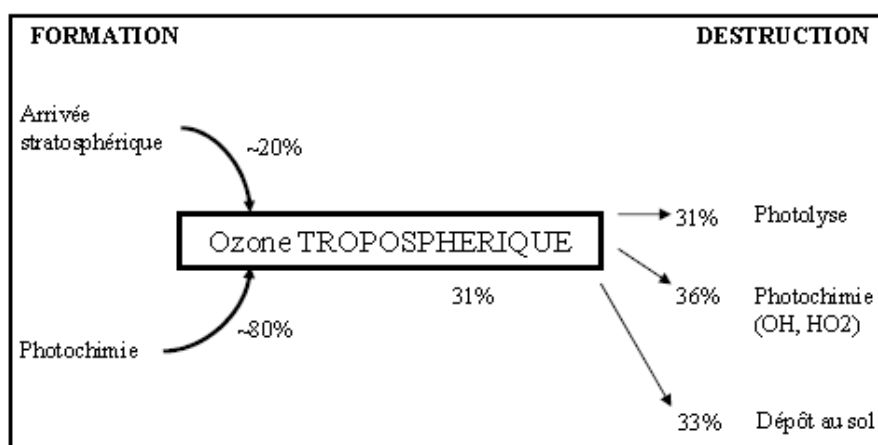


Fig. 2.8 - Bilan global estimé de l'ozone troposphérique. D'après l'Académie des Sciences (1993)

Cette partie a pour but d'expliquer les différents processus à l'origine de la formation et de la destruction de l'ozone troposphérique, ce qui permet de comprendre le bilan de l'ozone troposphérique.

2.3.1 Production de l'ozone

Production photochimique

On parle de production photochimique lorsque des réactions chimiques se produisent en présence de rayonnement solaire avec des constituants chimiques, d'origine naturelle ou anthropique telles que les NO_x , COV, CO, SO_2 . Les espèces chimiques résultant de ces réactions photochimiques sont des polluants secondaires, le principal étant l'ozone.

Tout comme dans la stratosphère, la formation directe d'ozone dans la troposphère résulte de la combinaison d'un atome d'oxygène dans l'état fondamental $\text{O}(^3\text{P})$ avec une molécule de dioxygène en présence d'un troisième corps permettant de stabiliser les produits de la réaction :



Cependant, contrairement à ce qui se passe dans la stratosphère, l'atome d'oxygène est ici produit à partir de la photodissociation du dioxyde d'azote NO_2 , aux longueurs d'ondes du visible et du proche ultraviolet (inférieures à 400 nm) :



La formation photochimique de l'ozone, selon les réactions (2.1) et (2.2), conduit également à la production de monoxyde d'azote NO, piège à ozone, puisqu'il réagit très rapidement avec celui-ci, pour reformer du dioxyde d'azote :



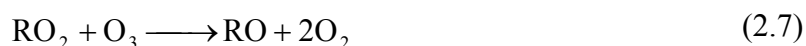
Un équilibre photochimique s'établit ainsi entre NO_2 , NO et O_3 , sur une échelle de temps de quelques minutes (pour des conditions de jour). L'ensemble des réactions 2.1, 2.2 et 2.3 ne peut pas conduire à une production nette d'ozone bien que le NO_2 soit à l'origine des concentrations parfois élevées d'ozone dans les régions urbaines pouvant dépasser les 100 ppb (parties par milliard).

En fait il n'y a production nette d'ozone que lorsque le NO est converti en NO_2 sans perte d'ozone. Cette conversion fait intervenir dans l'atmosphère de fond les radicaux hydroperoxyde HO_2 et peroxyde RO_2 , issus de l'oxydation du monoxyde de carbone, du méthane et des Composés Organiques Volatils Non Méthaniques (COVNM) par le radical hydroxyle OH. Les réactions qui entraînent une production d'ozone sont les suivantes :



Ces réactions sont en compétition avec :



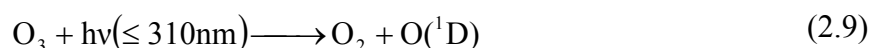


La réaction de type 2.7 peut plus largement impliquer des radicaux organiques de type $\text{R}'\text{R}''\text{CHO}_2$ formés à partir de la réaction de OH avec un COVNM. Les radicaux HO_2 réagissent préférentiellement avec NO lorsque les vitesses de réaction des réactions 2.4 et 2.5 deviennent respectivement supérieures à celles des réactions 2.6 et 2.7. Cela se produit lorsque le rapport des concentrations de NO et d' O_3 est supérieur à $2 \cdot 10^{-4}$, ce qui correspond à des concentrations de NO_x de l'ordre de 10-30 ppt (partie par billion) dans le cas de conditions troposphériques moyennes (O_3 entre 50 et 100 ppb). Cette valeur représente alors un niveau critique en dessous duquel il y a destruction de l'ozone et au-dessus duquel il y a formation. Cependant, pour de trop fortes concentrations de NO, la réaction de "titration" de l'ozone par NO détruit l'ozone (c.f. équation 2.3).

Lorsque les concentrations en NO_x sont suffisantes, l'oxydation du CO, du CH_4 ou des COVNM par le radical OH conduit à une production d'ozone. Le CO, CH_4 et les COV ainsi que les NO_x sont donc les principaux précurseurs de l'ozone. La production du radical OH résulte de la combinaison de l'oxygène atomique dans un premier état excité avec la vapeur d'eau H_2O :



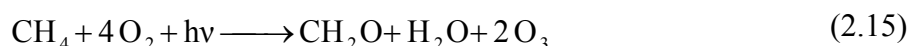
où $\text{O}({}^1\text{D})$ résulte de la photolyse de l'ozone par les rayonnements UV inférieurs à 310 nm :



Ainsi, la principale voie d'oxydation du CO ou du CH_4 est sa réaction avec le radical OH qui conduit à la formation de HO_2 (2.10 et 2.11) et CH_3O_2 (2.12 et 2.13) respectivement, conduisant à une conversion de NO en NO_2 sans perte d'ozone (2.4 et 2.5).



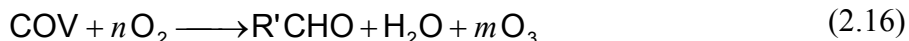
Les radicaux HO_2 et CH_3O_2 permettent alors l'oxydation du NO en NO_2 et conduisent à la production d'ozone dans le cycle d'oxydation du CO et du CH_4 . Les réactions bilan sont les suivantes :



La réaction du radical OH avec le CO ou avec le CH_4 (2.10 et 2.12) étant très lente, la production d'ozone nécessite environ 2 à 3 semaines et donc a lieu à grande échelle.

Les mécanismes d'oxydation des COV, un peu plus complexes, sont engendrés principalement par le radical OH le jour et le radical NO_3 la nuit, ainsi que par l'ozone

pour certains d'entre eux. La réaction bilan conduisant à une production d'ozone est la suivante :



où $\text{R}'\text{CHO}$ sont les composés carbonylés et m varie de 2 à 14 selon la nature du COV. Contrairement au CO et CH_4 , les réactions des COV avec le radical OH sont assez rapides (de l'ordre de l'heure à la semaine), notamment pour les composés insaturés. La production photochimique d'ozone est alors assez rapide près des zones d'émissions des COV (villes, feux de biomasse,...) et conduit à d'importants épisodes de pollution en ozone.

Les taux typiques de formation nette de l'ozone peuvent aller d'une à plusieurs dizaines de ppb/heure dans les panaches de pollution des grandes agglomérations alors qu'ils sont de l'ordre du ppb/jour dans la troposphère libre.

Les régions de source photochimique de l'ozone sont principalement la couche limite continentale ainsi que la haute troposphère en raison des faibles pertes dues à l'humidité absolue très faible.

Apport par la stratosphère

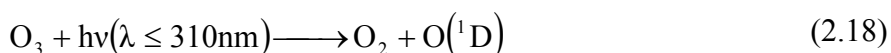
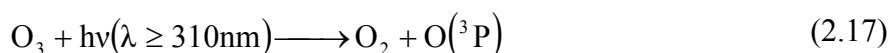
Les échanges entre la troposphère et la stratosphère représentent une source non négligeable pour l'ozone troposphérique (environ 20%). L'intensité de ces échanges verticaux dépend des saisons et des latitudes. Ils ont effectivement plus souvent lieu en hiver et au printemps aux moyennes latitudes. La section 2.2 a été consacrée à une description plus détaillée de ce phénomène.

2.3.2 Destruction de l'ozone

L'ozone est principalement détruit lors de sa photodissociation et lors de réactions photochimiques avec les COV en l'absence d'oxydes d'azote. Le dépôt sec à la surface est également un processus de destruction de l'ozone qui est important dans la couche limite.

Destruction par photodissociation

La photodissociation de l'ozone dans la troposphère se produit à plusieurs longueurs d'onde. Pour des longueurs d'onde supérieures à 310 nm (bande de Huggins), de l'oxygène atomique est produit dans l'état fondamental alors que pour des longueurs d'onde inférieures à 310 nm (bande de Hartley), l'oxygène atomique est produit dans l'état excité :



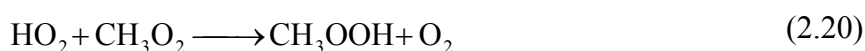
La réaction 2.17 conduit ensuite à la recombinaison immédiate de l'ozone via la réaction 2.1 qui est très rapide). En revanche, l'atome d'oxygène résultant de la photodissociation de l'ozone aux longueurs d'ondes inférieures à 310 nm (2.18) réagit avec la vapeur d'eau, pour former le radical hydroxyle OH, ce qui entraîne une perte d'ozone (équation 2.8).

La vapeur d'eau est essentiellement présente dans la troposphère libre avec un fort gradient vertical. Ainsi les régions de pertes de l'ozone par photodissociation sont

principalement les basses altitudes, notamment la couche limite marine tropicale en raison des faibles concentrations de NO_x et des concentrations en H_2O élevées. La moyenne troposphère libre est également une région de perte d'ozone, la vapeur d'eau étant encore présente en grande quantité dans cette région de l'atmosphère.

Destruction photochimique

L'ozone peut être détruit dans l'atmosphère par réaction photochimique. Pour de faibles concentrations de NO_x ($< 10\text{-}20$ ppt), les radicaux peroxydes issus des chaînes d'oxydation du CO et du CH_4 peuvent conduire à une perte d'ozone, soit en réagissant directement avec l'ozone (2.6 et 2.7) soit indirectement lors d'une recombinaison des radicaux HO_2 et CH_3O_2 sans reformation de NO_2 (2.19 et 2.20) :



Le peroxyde d'hydrogène H_2O_2 ainsi formé (2.19) et le peroxyde de méthyle CH_3OOH (2.20) sont ensuite éliminés par photodissociation ou par dissolution dans les nuages (et les précipitations).

D'autre part, l'ozone peut être détruit par réaction avec le radical OH (2.21) pendant la journée du fait que les radicaux² HO_x se forment en présence de rayonnement solaire ou encore par réaction avec les NO_x (2.3 et 2.22) :



La perte d'ozone due aux réactions 2.3 et 2.22 est surtout effective pendant la nuit car les espèces NO_2 et NO_3 sont facilement photodissociées dans le visible pour des longueurs d'onde comprises entre 470 et 650 nm et peuvent alors reformer de l'ozone. Ces réactions sont également prédominantes dans les centres des villes où l'on trouve de très fortes concentrations de NO_x qui inhibent toute production photochimique d'ozone.

Destruction par dépôt au sol

La destruction par dépôt sec est un processus dominant à la surface (Galbally et Roy, 1980), entraînant soit une décomposition thermodynamique, catalysée par les surfaces, dont l'équation sommaire s'écrit $2\text{O}_3 \rightarrow 3\text{O}_2$, soit une absorption de l'ozone par les surfaces végétales, notamment au cours de la journée lorsque les végétaux ont une activité de photosynthèse intense nécessitant une ouverture des stomates. Le taux de dépôt de l'ozone dépend fortement du type de surface; de plus, il augmente avec l'humidité relative (Grontoft et al., 2004). Ainsi, une forêt tropicale absorbera plus d'ozone que n'importe quel autre type de surface alors que la vitesse de dépôt au niveau des océans ou de la glace est quasi nulle. La vitesse de dépôt de l'ozone peut atteindre des valeurs journalières de l'ordre de 4 mm.s^{-1} aux moyennes latitudes et de l'ordre de 8 mm.s^{-1} au niveau des forêts équatoriales. Les valeurs apparaissent maximales en été.

² $\text{HO}_x = \text{HO} + \text{HO}_2$

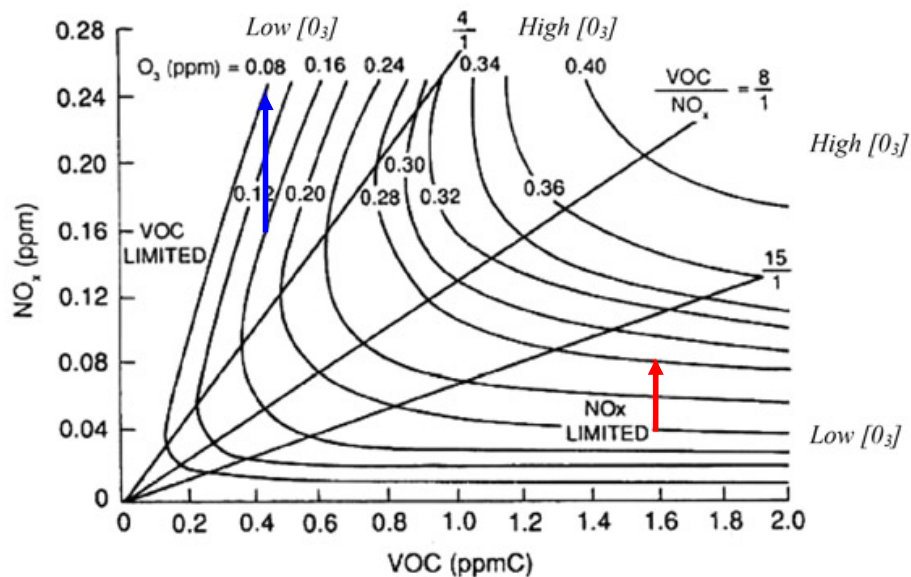


Fig. 2.9 - Régimes chimiques pour l'ozone. Diagramme "isopleths" de concentration d'ozone en fonction du rapport NO_x/COV . D'après Seinfeld et Pandis (1998)

2.3.3 Les régimes chimiques : NO_x limité/COV limité

L'équilibre entre l'ozone et ses principaux précurseurs les NO_x et les COV est un point clé pour comprendre les mécanismes engendrant une production de pollution photochimique. Bien que la formation d'ozone soit un phénomène non linéaire, il est toutefois possible de mettre en évidence des régimes chimiques particuliers conduisant à la formation de ce polluant. Ces régimes peuvent être visualisés sur des diagrammes "isopleths" dont les isolignes de concentration en ozone représentent les relations entre l'ozone et ses précurseurs. La figure 2.9 en est un exemple où les concentrations d'ozone sont représentées comme une fonction des concentrations initiales de NO_x et de COV. Cette figure permet de distinguer trois régimes chimiques en fonction des niveaux de concentration en NO_x et en COV :

- Dans le cas d'un régime limité en NO_x (faibles concentrations en NO_x), une augmentation des concentrations en NO_x entraîne une augmentation de celles en ozone qui sont peu perturbées par les variations des concentrations en COV (zone du diagramme caractérisée par la flèche rouge).
- Dans le cas d'un régime saturé en NO_x ou limité en COV (niveaux élevés en NO_x et faibles en COV), une augmentation des concentrations en NO_x entraîne une diminution de celles en ozone (zone du diagramme caractérisée par la flèche bleue).
- Dans le cas d'un régime intermédiaire, la production d'ozone dépend à la fois des concentrations en NO_x et en COV. La diminution soit de NO_x soit de COV entraîne une diminution des concentrations en ozone (zone centrale du diagramme).

Si l'on prend l'exemple du régime saturé en NO_x , la flèche bleue indique une augmentation des concentrations en NO_x de 0.16 ppm à 0.24 ppm, ce qui se traduit par une diminution des concentrations en ozone de 0.16 à 0.08 ppm.

En troposphère non polluée, les précurseurs de l'ozone sont issus principalement du transport longue distance depuis les régions d'émission et sont présents en faible quantité. On se trouve dans un régime NO_x limité, pour lequel une augmentation des émissions de NO_x va entraîner la formation de l'ozone.

En revanche, en troposphère polluée, comme c'est le cas dans une agglomération, les émissions des précurseurs de l'ozone sont beaucoup plus importantes. Les COV et les NO_x sont donc présents en grande quantité. Dans les villes très polluées, on rencontre très souvent un régime COV limité essentiellement à cause de réactions de type :



qui engendrent une perte de radicaux HO_x due à la présence en grande quantité de NO_x . Pour de faibles concentrations de NO_x , cette voie ne constitue pas une perte importante pour les radicaux HO_x car les réactions 2.19 et 2.20 sont prédominantes. Ainsi de trop fortes concentrations en NO_x en milieu urbain vont entraîner une diminution des vitesses de production photochimique de l'ozone.

En s'éloignant des villes tout en restant dans les panaches de pollution, la quantité de précurseurs émis va diminuer, ce qui va conduire à un basculement d'un régime limité par les COV à un régime limité par les NO_x . Dans les premières heures après l'émission, dans les panaches des grandes agglomérations, les taux de formation photochimique de l'ozone peuvent atteindre plusieurs dizaines de ppb par heure. Ainsi l'ozone sera donc présent en quantité plus importante dans les zones périurbaines et rurales sous le panache de pollution des villes que dans le centre des villes.

2.3.4 Sources et puits des principaux précurseurs

Comme nous l'avons vu précédemment, les principaux précurseurs de l'ozone, dits polluants primaires, sont les oxydes d'azote NO_x , les composés carbonés (CO et CH_4) et les COV. Les différentes sources de précurseurs sont résumées dans le tableau 2.2.

Les principales sources sont d'origine anthropique avec les combustions de la biomasse ou les combustibles fossiles. Les émissions par les océans et les végétaux, d'origine naturelle, sont beaucoup plus faibles. Le CO aura donc des concentrations plus importantes dans les régions industrialisées, essentiellement dans l'hémisphère nord mais également dans les régions équatoriales. On remarquera que les sources mixtes liées à l'oxydation du méthane et des hydrocarbures représentent une part non négligeable de la production totale.

Contrairement au CO et au CH_4 , les COV (toujours à l'échelle globale) sont produits majoritairement de façon naturelle par la végétation. Bien que les émissions d'origine anthropique dues à la combustion de la biomasse et de combustibles fossiles, et à l'évaporation de solvants, soient quantitativement plus faibles que les émissions naturelles, elles sont majoritaires dans les régions polluées.

Tab. 2.2 - Estimation des sources d'émissions des précurseurs de l'ozone en Tg.an⁻¹, avec pour certaines sources les incertitudes associées. D'après Delmas (2005)

SOURCES	CO	CH ₄	NO _x	COV
anthropiques				
Combustion de la biomasse	1000 ±600	20	7	56
Combustion fossiles	640 ±200		22	42
Sols cultivés (fertilisation)			4	
Mines de charbon, gaz naturel et industrie pétrolière		100		
Rizières		60		
Animaux domestiques		80		
Animaux sauvages			4	
Excréments d'animaux		25		
Traitement des déchets		25		
Décharges d'ordures		30		
naturelles				
Océan	100 ±90	10		42
Végétation	75 ±25			1150
Emission des sols	17 ±15		6	
Zones inondées naturelles		110		
Termites		20		
Eaux naturelles		5		
Hydrates de gaz		5		
Eclairs			5 ±3	
mixtes				
Oxydation du CH ₄	600 ±300			
Oxydation des COV	900 ±500			
Production totale	3300 ±1700	490	47	1290

Les sources des NO_x sont essentiellement d'origine anthropique avec la combustion de la biomasse et de combustibles fossiles. Les émissions par les sols et les éclairs sont plus faibles mais deviennent des sources majoritaires pour les NO_x dans des zones plus reculées ainsi que dans la troposphère libre tropicale. Ce tableau omet les sources liées aux avions et au transport depuis la stratosphère mais elles représentent moins de 1 Tg de NO_x par an.

Les principaux puits des précurseurs de l'ozone sont la réaction avec le radical OH ou encore le lessivage des espèces solubles H₂O₂ et HNO₃ (Mari et al., 2000) mais aussi, dans une moindre mesure le dépôt au sol et le transport vers la stratosphère.

2.3.5 Exemple de profils typiques d'ozone

Un exemple de variabilité saisonnière typique de l'ozone dans la moyenne troposphère libre des moyennes latitudes est illustré sur la figure 2.10. On observe que les concentrations d'ozone sont maximales au printemps et on constate une amplitude de cette variation de l'ordre de 20 ppb. En moyenne, les valeurs typiques sont de l'ordre de 60 ppb au printemps et de 40 ppb en hiver.

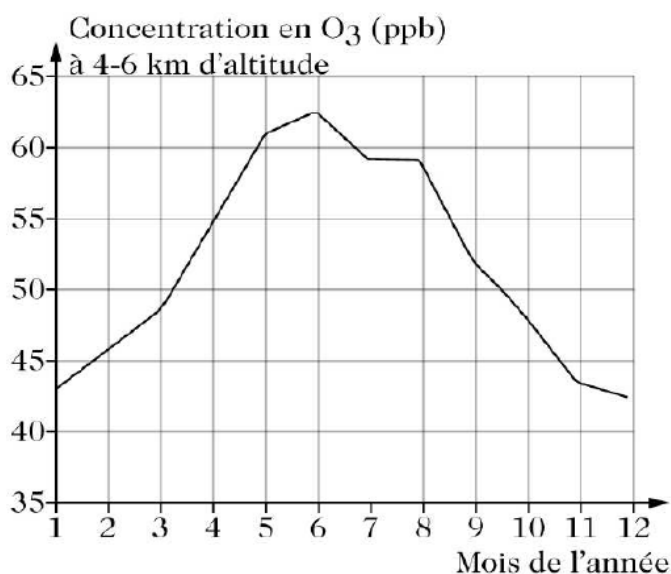


Fig. 2.10 - Evolution temporelle du rapport de mélange d'ozone troposphérique, exprimé en ppb et mesuré sur une période d'un an dans une couche d'épaisseur 4 à 6 km d'altitude au-dessus de la France. D'après Delmas (2005)

Outre une variabilité temporelle, les profils d'ozone mesurés dans la troposphère sont caractérisés par une variabilité spatiale. Un exemple de trois profils d'ozone typiques d'une région continentale aux moyennes latitudes nord (courbe rouge et bleue) et d'une région tropicale (courbe noire) est illustré sur la figure 2.11. On constate que les concentrations d'ozone sont beaucoup plus faibles aux tropiques qu'aux moyennes latitudes nord. Les concentrations d'ozone sont de l'ordre de 20 ppb dans la couche limite et augmentent dans la troposphère libre. Si l'on compare les deux profils mesurés aux moyennes latitudes, dans le cas pollué, les concentrations d'ozone dans la couche limite (entre la surface et environ 3 km) sont plus importantes que celles de la troposphère libre. On y trouve des valeurs atteignant les 100 ppb.

Ces observations correspondent tout à fait à la description des différents processus physico-chimiques présentés précédemment. En effet, les fortes concentrations observées aux moyennes latitudes nord sont attribuées aux émissions des précurseurs de l'ozone en surface et donc à une production photochimique d'ozone intense. Alors que les faibles concentrations d'ozone observées aux tropiques sont principalement dues à une destruction photochimique d'ozone plus importante en raison du rayonnement solaire plus intense et des teneurs plus élevées en vapeur d'eau. Un transport convectif vigoureux peut ensuite transporter les masses d'air de faibles concentrations d'ozone depuis la surface vers la troposphère libre. Par contre, au cours de la saison des feux, les émissions de précurseurs d'ozone liées à la combustion de biomasse peuvent engendrer des concentrations élevées d'ozone, comparables à celles des moyennes latitudes polluées.

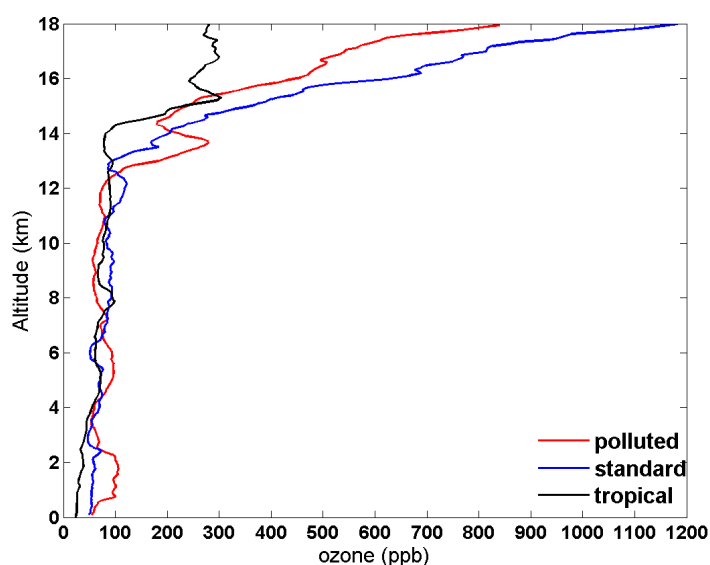


Fig. 2.11 - Profils verticaux d'ozone typiques pour des conditions continentales standards, polluées et tropicales (mesurés par des ballons sonde). Les profils continentaux pollués et non pollués ont été mesurés aux moyennes latitudes nord.

2.4 Le modèle CHIMERE

Le modèle CHIMERE a été développé pour calculer de manière précise les concentrations de gaz et de particules à l'échelle régionale, dans la couche limite et dans la troposphère libre. Le modèle est utilisé pour de nombreuses applications telles que l'analyse d'événements de pollution (Vautard et al., 2003), les scénarii prospectifs de réduction des émissions (Coll et al., 2009) et la prévision de la qualité de l'air en mode opérationnel (Honoré et al., 2008; Rouil et al., 2009). Ces applications impliquent de respecter certaines contraintes dont la rapidité du calcul numérique et l'accessibilité des données d'entrée. Afin de satisfaire à ces exigences, le modèle utilise en entrée les données météorologiques issues des modèles numériques de prévision du temps (mode "off line"), ce qui évite de recalculer les champs météorologiques.

CHIMERE est un outil qui évolue régulièrement (environ une version par année). Il existe donc de nombreuses versions du modèle qui sont accessibles sur le site internet <http://euler.lmd.polytechnique.fr/chimere/>. Dans ces travaux, nous utilisons une version de CHIMERE dans la configuration continentale, incluant la troposphère libre jusqu'à 200 hPa (Blond et al., 2007) et traitant uniquement la phase gazeuse. Cette version nécessite un temps de calcul, sur une station de travail (PC-LINUX), d'environ 6 minutes CPU par jour simulé. Ceci permet d'effectuer en moins de 24 h une simulation sur une saison entière.

2.4.1 Description du modèle

CHIMERE est un modèle eulérien de chimie-transport qui simule, en chaque point d'une grille, l'évolution spatio-temporelle des concentrations d'un grand nombre de molécules gazeuses et de particules, en se basant sur l'équation de conservation de la masse :

$$\left(\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial t}\right) + \nabla(\mathbf{u}\mathbf{c}) = \nabla(\mathbf{K}\nabla\mathbf{c}) + \mathbf{P} - \mathbf{L} \quad (2.24)$$

où \mathbf{c} est un vecteur comprenant les concentrations de tous les constituants chimiques à tous les points de grille du modèle, \mathbf{u} le vecteur vitesse du vent, \mathbf{K} le tenseur de diffusivité turbulente, et \mathbf{P} et \mathbf{L} représentent respectivement les termes de production et de perte, dues au transport, aux réactions chimiques, aux émissions et au dépôt sec.

2.4.2 Géométrie du modèle continental

Le choix de la résolution horizontale, verticale ainsi que du domaine est libre. Dans cette étude, nous avons choisi la configuration suivante :

- horizontalement, le modèle détermine les champs de concentrations des polluants sur une maille de 0.5° , ce qui correspond à environ 50 km à notre latitude. Le domaine couvre une grande partie de l'Europe de l'Ouest [10.5W; 22.5E; 35N; 57.5N], comme l'illustre la figure 2.11. Le maillage est constitué de 67 x 46 cellules.
- verticalement, le modèle calcule les concentrations des polluants dans 17 couches, couvrant l'ensemble de la couche limite et la troposphère libre, de la surface à 200 hPa (~ 12 km). Contrairement au maillage horizontal du domaine, les couches verticales ne sont pas toutes régulières. La première couche a une hauteur de 40 m environ, les autres couches sont fixées en niveaux dits "hybrides sigma- p " (jusqu'à 2 km), puis tous les kilomètres jusqu'à la tropopause.

Chaque couche définie en niveau "hybride sigma- p " est définie à partir de la pression en son milieu selon l'expression suivante :

$$p_{k+\frac{1}{2}} = A_{k+\frac{1}{2}} p_0 + B_{k+\frac{1}{2}} p_s \quad (2.25)$$

où k est le niveau vertical, p_0 une pression de référence constante (1 bar) et p_s la pression de surface. A et B sont des coefficients dont les valeurs varient avec la hauteur de façon à ce que la coordonnée près de la surface ressemble à la coordonnée sigma et que celle au sommet de l'atmosphère ressemble à la coordonnée de pression (figure 2.13). Près de la surface, les couches sont les plus fines, ce qui permet une grande précision du modèle dans la couche limite qui est fortement soumise aux influences de la surface. Les coefficients A et B ainsi que les niveaux de pression et d'altitude sont donnés dans le tableau 2.3.

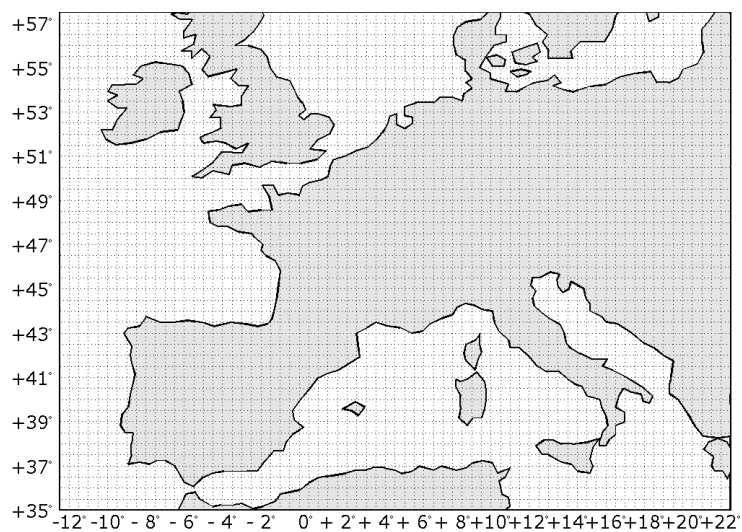


Fig. 2.12 - Grille horizontale du modèle CHIMERE dans sa version continentale.

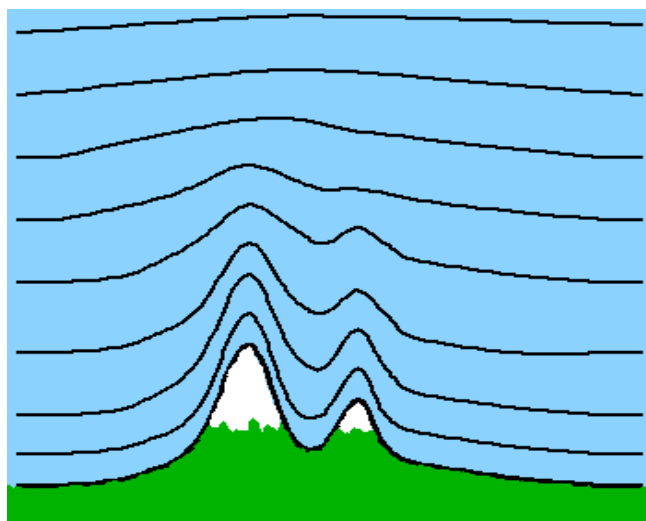


Fig. 2.13 - Schématisation des coordonnées hybrides sigma- p . Les coordonnées sigma sont utilisées près de la surface alors que les coordonnées p sont utilisées dans les hautes couches de l'atmosphère.

Tab. 2.3 - Définition des niveaux verticaux de CHIMERE. Les altitudes indiquées dans le tableau ont été calculées à partir des conditions de pression et de température d'une atmosphère standard.

$A_{k+\frac{1}{2}}$	$B_{k+\frac{1}{2}}$	$p_{k+\frac{1}{2}}$	Altitude (m)
0	0.995	995	42.6
0.00252	0.98248	985	237
0.00629	0.96371	970	366
0.01182	0.93618	948	558
0.0205	0.893	914	861
0.03321	0.82979	863	1334
0.05233	0.73467	787	2082
0.07422	0.62578	700	3000
0.09534	0.52066	616	4000
0.11446	0.42554	540	5000
0.13157	0.34043	472	6000
0.14692	0.26408	411	7000
0.16076	0.19524	356	8000
0.17283	0.13517	308	9000
0.18365	0.08135	265	10000
0.19321	0.03379	227	11000
0.2	0	200	12000

2.4.3 Données d'entrée du modèle

La météorologie

Le modèle nécessite en entrée des paramètres météorologiques qui peuvent influencer sur les concentrations des constituants troposphériques, au travers des processus de transport et de physico-chimie. Ces paramètres d'entrée incluent le vent horizontal (zonal et méridien), la température, l'humidité spécifique, la pression de surface ainsi que la couverture nuageuse de quatre types différents (nuages bas, de moyenne altitude, hauts et convectifs).

Quelle que soit la version du modèle, les données météorologiques sont soit issues du Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme (CEPMMT, ECMWF pour European Centre for Medium-Range Weather Forecasts en anglais) ou calculées par un modèle de type méso-échelle (tel que MM5).

Dans la version de CHIMERE utilisée dans ces travaux, les données météorologiques proviennent des champs ECMWF dont la résolution horizontale est de 0.5°. Ce sont des analyses à 00:00 et à 12:00 à partir desquelles sont calculées des prévisions toutes les 3 h (en mode "off line"). La résolution temporelle est différente de celle utilisée par le modèle CHIMERE, les données incluant les champs de température, pression, vent, d'humidité et de nuage sont donc interpolées linéairement toutes les heures. Verticalement, les données météorologiques, disponibles pour 36 niveaux verticaux couvrant toute la troposphère (le 36^{ème} niveau se trouvant à environ 100 hPa), sont interpolées sur la grille de CHIMERE.

La convection est diagnostiquée de la même manière que le travail de Olivié et al. (2004) utilisant le schéma de Tiedtke (1989).

Les émissions

Le modèle continental CHIMERE nécessite en entrée des émissions de composés primaires qui sont mis en jeu dans les réactions photochimiques. Ces émissions, généralement surfaciques, peuvent être soit de type anthropique soit de type biogénique.

– Emissions anthropiques

Les émissions anthropiques, majoritairement en milieu urbain et principalement liées au trafic automobile et aux industries, peuvent être divisées en cinq classes de composés : NO_x, CO, SO₂, CH₄ et les COVNM. A l'échelle continentale, les émissions proviennent de la base de données EMEP (European Monitoring and Evaluation of Pollutants, <http://www.emep.int>) et sont fournies sous forme de totaux annuels pour l'année 2001 (Vestreng et al., 2004). Ces données ont une résolution horizontale de 0.5° x 0.5° environ et sont interpolées spatialement sur la grille de CHIMERE.

Afin de rendre les données brutes utilisables dans CHIMERE, un module d'interface est nécessaire. Ce module permet en effet de transformer les données brutes en données horaires variant en fonction du mois, du jour de la semaine et de l'heure de la journée.

D'après Suutari et al. (2001), les incertitudes des émissions totales annuelles varient de 10% à 30% selon le pays Européen. Des émissions horaires, journalières et mensuelles sont calculées en imposant les variations temporelles typiques à partir de la base de données GENEMIS (Generation of European Emission Data for Episodes) (1994). Ainsi une réduction des émissions le week-end est considérée. Concernant les avions, seules les émissions à la surface contribuant considérablement sont prises en compte (Colville et al., 2001).

– Emissions biogéniques

Les émissions biogéniques de COV, majoritairement en milieu rural, proviennent principalement de l'isoprène et des terpènes. Ces émissions sont issues soit directement de la végétation (en particulier certaines espèces d'arbres parmi les épicéas et les chênes) soit du sol suite à la dégradation photochimique de la matière organique. Elles dépendent donc fortement du type de sol et de végétation. Par conséquent, il est nécessaire d'établir des cadastres d'émission. La classification des sols provient de la base de données d'occupation des sols GLCF (Global Land Cover Facility) couvrant l'Europe avec une résolution horizontale de 1 km. Ces données représentent la fraction au sol (comprise entre 0 et 1) occupée par chacune des classes suivantes : cultures, prairies, sols nus, sols urbanisés, arbustes, forêts (2 catégories), mers-océans, autres. Les émissions biogéniques sont calculées pour chaque heure de chaque journée, en tenant compte de leur dépendance à la température et à l'ensoleillement. La base de données utilisée pour les émissions des composés organiques volatils biogéniques est décrite par Derognat et al. (2003).

Les conditions aux limites et initiales

Schématiquement, le domaine CHIMERE est une immense boîte délimitée par les bornes Nord, Sud, Est, Ouest et le sommet de la couche supérieure. Pour minimiser les

effets de bord, il est nécessaire de connaître les concentrations aux limites du modèle. La version continentale de CHIMERE utilise, à chaque point de grille des limites latérales et supérieures du domaine, les concentrations mensuelles climatologiques d'un certain nombre d'espèces (O_3 , NO_x , COVNM), calculées par le modèle global de chimie-transport MOZART (Model for Ozone And Related chemical Tracers) (Horowitz et al., 2003) ou par le modèle LMDz-INCA (Hauglustaine et al., 2004; Folberth et al., 2005). Ces conditions aux limites sont interpolées horizontalement et verticalement sur la grille du modèle CHIMERE. Par ailleurs, elles servent également de conditions initiales. Afin de laisser le temps au modèle de se mettre à l'équilibre, la simulation est lancée trois jours avant la période d'étude.

2.4.4 La chimie

CHIMERE présente la possibilité d'utiliser différents mécanismes chimiques. Le schéma complet et original, appelé MELCHIOR (Modèle d'Etude Lagrangienne de la CHimie de l'Ozone à l'échelle Régionale), contient 333 réactions chimiques de 82 espèces gazeuses (Lattuati, 1997). Ce mécanisme chimique a été élaboré pour la modélisation de la pollution photo-oxydante non seulement sous conditions polluées en précurseurs d'ozone (NO_x et COV) près des sources d'émission mais aussi sous conditions relativement propres. Il est basé sur le mécanisme en phase gazeuse d'EMEP (Simpson, 1992) et inclut d'importantes extensions relatives à la chimie des nitrates NO_3 et organiques, la dégradation des hydrocarbures biogéniques et aromatiques et la recombinaison des radicaux peroxy organiques.

Afin de réduire le temps de calcul, le mécanisme utilisé dans CHIMERE est une version réduite de MELCHIOR, suivant le concept "d'opérateurs chimiques" (Carter, 1990). Cette version contient 44 espèces chimiques condensées et 116 réactions chimiques. Les réactions de photolyse prennent en compte le rayonnement actinique. Les valeurs des taux de photolyse sont calculées à partir des sorties du modèle TUV (Tropospheric Ultraviolet and Visible model) (Madronich et Flocke, 1998) et sont modulées par la couverture nuageuse (ESQUIF, 2001).

2.4.5 La physique

Le transport horizontal

Le transport horizontal des concentrations des espèces chimiques est calculé à partir du schéma numérique "PPM" d'ordre 3 (pour Parabolic Piecewise Method en anglais), proposé par Coletta et Woodward (1984) dont l'avantage principal est de limiter fortement la diffusion "numérique" (c'est-à-dire artificielle, due à la formulation mathématique du schéma). Cependant étant coûteux en temps de calcul, ce schéma est seulement utilisé pour le transport des espèces à longue durée de vie (ce qui équivaut à la moitié des espèces utilisées dans le modèle). Les autres espèces sont transportées avec un schéma d'ordre 1.

Le transport vertical

Le transport vertical est calculé de façon à compenser la convergence ou la divergence des flux de masse d'air horizontaux. Plus précisément, si la couche de surface contient plus de matière entrante que sortante, alors un flux vertical ascendant se forme entre cette

couche et celle du dessus pour compenser ce déséquilibre. Ce flux vertical est ensuite intégré au bilan de masse de la couche suivante et le processus est répété jusqu'au sommet du modèle, où les polluants sont définitivement évacués ou importés depuis la troposphère (Blond, 2002). Dans cette méthode, non seulement la masse est conservée mais aussi le transport vertical est cohérent avec le transport horizontal.

Le mélange turbulent

Le mélange horizontal, étant négligeable, n'est pas pris en compte dans le modèle, alors qu'il l'est généralement dans les modèles méso-échelles (Chang et al., 1987). Le mélange turbulent vertical se produit seulement dans la couche limite et est paramétré par une diffusivité turbulente verticale K calculée selon la méthode de Troen et Mahrt (1986). La hauteur de la couche limite est calculée à partir du nombre de Richardson de couche et sa valeur minimale est fixée à 50 m afin d'éviter de trop faibles hauteurs de mélange.

Le dépôt sec

Le dépôt sec est un processus de surface qui consiste en un transfert d'espèces gazeuses depuis l'atmosphère jusqu'à la surface de la Terre. La vitesse de dépôt est généralement paramétrée selon la méthode de Wesely (1989) qui fait analogie à des résistances électriques. On peut décomposer ce processus en trois phases :

- la première phase, constituant la composante aérodynamique du transfert, correspond à un processus de transport, par diffusion turbulente, des molécules gazeuses de la couche limite de surface vers la couche laminaire (couche attenante à la surface). La résistance aérodynamique est définie comme l'inverse du coefficient de trainée et du module du vent dans la plus basse couche du modèle (Wesely et Hicks, 1977);
- la seconde phase correspond à un processus de transport par diffusion moléculaire à travers la couche laminaire. Le calcul de la résistance à travers cette couche se fait selon la méthode de Hicks et al. (1987);
- la dernière étape correspond au piégeage des molécules gazeuses par la surface. La résistance de surface est estimée selon la méthode de Erisman et al. (1994), toujours par analogie à des résistances, à partir de la solubilité de l'espèce chimique dans cette couche laminaire et du type de surface.

Afin de tenir compte du type de surface lors du calcul de la vitesse de dépôt, les données issues de la base de données d'occupation des sols GLCF sont utilisées.

2.5 Résumé et conclusions

Ce chapitre a permis de donner un aperçu de la physique et de la chimie de l'atmosphère, en rappelant les principaux processus gouvernant l'équilibre de l'ozone, notamment dans la troposphère. L'ozone est un polluant secondaire résultant de réactions chimiques complexes mettant en jeu divers constituants chimiques, dits polluants primaires, sous l'action du rayonnement solaire. Ses précurseurs sont principalement les oxydes d'azote (NO_x) et les composés carbonés, comme le monoxyde de carbone (CO) et les COV. Ils peuvent provenir d'émissions naturelles, principalement par la végétation, les

océans, les sols ou plus localement par les éclairs et les volcans mais également d'émissions anthropiques (feux de biomasse, industrie,...). Dans les régions fortement peuplées (agglomérations et leurs environs), la composante anthropique des émissions est majoritaire. La description des processus dynamiques de la troposphère a montré que le transport depuis la stratosphère constitue une autre source non négligeable de l'ozone troposphérique.

Nous avons également identifié une variabilité dans les profils d'ozone mesurés dans la troposphère libre. Alors que des valeurs de l'ordre de 30 ppb sont observées dans la couche limite au niveau des tropiques, on trouve des valeurs de l'ordre de 60 ppb aux moyennes latitudes nord, voire de 100 ppb lorsque les conditions sont polluées.

Dans une dernière partie, nous avons décrit le modèle de pollution CHIMERE dont l'objectif est la simulation des concentrations de constituants atmosphériques liés à la photochimie de la basse troposphère. Le modèle est utilisé pour l'évaluation, le contrôle et la prévision de la qualité de l'air. La comparaison du modèle aux observations de polluants atmosphériques (notamment pour l'ozone) atteste de sa bonne précision (Blond, 2002). Cependant, le modèle commet des erreurs systématiques, notamment la nuit et durant les heures de fortes émissions (Blond et al., 2004). Son utilisation pour la prévision opérationnelle nécessite d'améliorer encore la précision des champs de polluants simulés. Une méthode permettant une telle amélioration consiste à corriger les champs modélisés *a posteriori* en utilisant des observations qui sont de différents types. Les mesures d'ozone *in situ* sont de très bonnes qualités, cependant la couverture spatio-temporelle reste très limitée (c.f. chapitre 1). Les observations satellitaires, bien que leur précision soit moins bonne, fournissent, quant à elle, une couverture globale, comme nous allons le présenter dans le prochain chapitre.

Chapitre 3

Télédétection spatiale dans l'infrarouge

Un grand nombre d'instruments mesurant la composition atmosphérique utilisent des techniques de mesure à distance, dites de télédétection. Cette technique se base sur l'interaction du rayonnement électromagnétique avec les constituants de l'atmosphère. Après son passage dans l'atmosphère, le rayonnement électromagnétique est composé de signatures spectrales qui sont caractéristiques de l'absorption ou de l'émission par les molécules présentes dans l'atmosphère. Ainsi il est possible, à partir du rayonnement mesuré à distance, d'extraire l'information sur la composition de l'atmosphère comme les concentrations d'un gaz, en utilisant une méthode d'inversion adaptée.

En fonction de l'origine du rayonnement mesuré, on distingue deux types d'instruments de télédétection spatiale : la télédétection active et passive. La télédétection active utilise un rayonnement artificiel généré par l'instrument lui-même tel que le lidar dans le domaine de l'ultra-violet et de l'infrarouge ou le radar (RADIO Detection And Ranging) dans le domaine des micro-ondes. Au contraire, la télédétection passive mesure un rayonnement émis naturellement par le Soleil ou l'émission thermique de la Terre et de l'atmosphère. Dans ce travail, on se limite à la télédétection passive qui est une technique la plus communément utilisée à bord des satellites pour observer la composition chimique gazeuse de l'atmosphère. Le travail présenté ici repose sur l'analyse du rayonnement IR émis par la surface de la Terre et les différentes couches atmosphériques, enregistré depuis l'espace par l'instrument IASI qui a été lancé à bord du satellite MetOp en 2006.

La première partie de ce chapitre rappelle les caractéristiques du rayonnement mesuré depuis l'espace en se basant sur les principes du transfert radiatif et sur les propriétés spectroscopiques des molécules. Nous introduisons ensuite le formalisme du modèle inverse qui consiste à déterminer les quantités des gaz atmosphériques à partir du rayonnement mesuré. La dernière partie de ce chapitre est dédiée à la description des caractéristiques de l'instrument IASI qui sonde l'atmosphère en visée au nadir.

3.1 Le transfert radiatif dans l'infrarouge thermique

3.1.1 Emission du rayonnement

Tout corps à température non nulle émet un rayonnement électromagnétique, appelé communément émission thermique. Ce rayonnement directement associé à l'agitation

thermique des particules constituant la matière, donc de l'énergie, est fonction de la température. L'intensité de ce rayonnement peut être calculée de manière exacte pour les corps "parfaits", appelés corps noirs, qui absorbent toute l'énergie reçue sans en réfléchir ni en transmettre. L'expression du rayonnement d'un corps noir émis à la température T en fonction du nombre d'onde $\tilde{\nu}$, appelé également luminance spectrale, est donnée par la fonction de Planck :

$$B_{\tilde{\nu}}(T) = \frac{2 h \tilde{\nu}^3 c^2}{\left(\exp\left(\frac{h \tilde{\nu} c}{kT}\right) - 1 \right)}$$

avec $h = 6.63 \cdot 10^{-34}$ J s la constante de Planck, $c = 3 \cdot 10^8$ m s⁻¹ la vitesse de la lumière dans le vide et $k = 1.38 \cdot 10^{-23}$ J K⁻¹ la constante de Boltzmann. Le nombre d'onde, variable spectrale utilisée en spectroscopie, est relié à la longueur d'onde λ selon l'expression $\tilde{\nu} = 1/\lambda$, où λ est exprimée en cm. L'unité du nombre d'onde est donc le cm⁻¹. La figure 3.1 illustre le spectre d'émission thermique d'un corps noir à diverses températures dans le domaine spectral 0 - 3000 cm⁻¹.

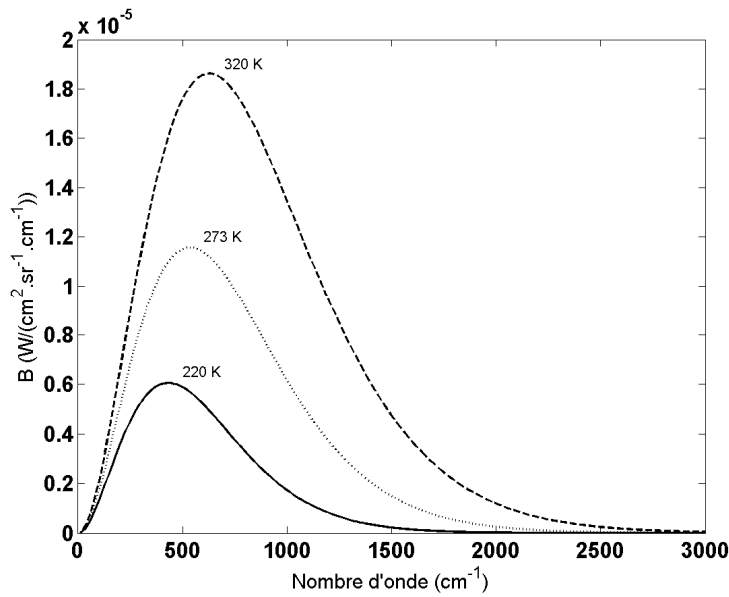


Fig. 3.1 - Spectres d'émission d'un corps noir à 220 K, 273 K et 320 K.

Le concept d'un corps noir est en fait une idéalisation. Un corps réel (tel que la surface de la Terre ou une molécule atmosphérique), appelé corps gris, émet moins de rayonnement qu'il en absorbe. On définit alors l'émittance spectrale $\varepsilon_{\tilde{\nu}}$ d'un corps gris qui correspond au rapport entre la luminance spectrale du corps réel $L_{\tilde{\nu}}$ et celle du corps noir $B_{\tilde{\nu}}$; donc $\varepsilon_{\tilde{\nu}} = L_{\tilde{\nu}}/B_{\tilde{\nu}} \leq 1$. On peut également définir l'absorptivité spectrale $a_{\tilde{\nu}}$ correspondant à la fraction du rayonnement incident absorbé par ce corps. A l'équilibre thermodynamique (ce qui signifie en pratique que l'on peut définir une température

unique), la loi de Kirchhoff établit que $\varepsilon_{\vec{\nu}} = a_{\vec{\nu}}$, c'est-à-dire que pour chaque fréquence et chaque direction donnée, un corps absorbe d'autant plus un rayonnement qu'il est capable de l'émettre.

3.1.2 L'équation du transfert radiatif et le modèle direct

L'équation du transfert radiatif permet de modéliser le transfert du rayonnement émis dans un milieu hétérogène (cas de l'atmosphère). Considérons un élément de volume cylindrique axé le long de la direction \vec{S} , de surface dS et de longueur ds et notons $L_{\vec{\nu}}(s)$ et $L_{\vec{\nu}}(s+ds)$ les luminances spectrales à l'entrée et à la sortie du cylindre, respectivement. Le rayonnement à la sortie du cylindre peut provenir de trois origines différentes (Delmas, 2005) (figure 3.2) :

- Certains photons incidents issus de $L_{\vec{\nu}}(s)$ ont été absorbés par le milieu ou diffusés dans une autre direction. On parle alors d'extinction du rayonnement incident et la fraction transmise à la sortie du cylindre est :

$$L_{\vec{\nu}}(s) + dL_{\vec{\nu}}^{ext}(s) \text{ avec } dL_{\vec{\nu}}^{ext}(s) = -\alpha_{\vec{\nu}}^{ext} L_{\vec{\nu}}(s) ds < 0 \quad (3.1)$$

où $\alpha_{\vec{\nu}}^{ext} = \alpha_{\vec{\nu}}^{abs} + \alpha_{\vec{\nu}}^{dif}$ est la somme des coefficients d'absorption et de diffusion.

- Des photons incidents provenant d'une direction différente de \vec{S} ont pu être diffusés dans la direction \vec{S} .
- Enfin des photons ont pu avoir été émis dans l'élément de volume. La luminance résultante s'écrit $dL_{\vec{\nu}}^{emi}$. On traduit ce phénomène par l'intermédiaire de la fonction source $J_{\vec{\nu}}$ telle que :

$$dL_{\vec{\nu}}^{emi}(s) = \alpha_{\vec{\nu}}^{abs} J_{\vec{\nu}}(s) ds \quad (3.2)$$

La luminance à la sortie du cylindre s'écrit alors :

$$L_{\vec{\nu}}(s+ds) = L_{\vec{\nu}}(s) + dL_{\vec{\nu}}^{ext}(s) + dL_{\vec{\nu}}^{dif}(s) + dL_{\vec{\nu}}^{emi}(s) \quad (3.3)$$

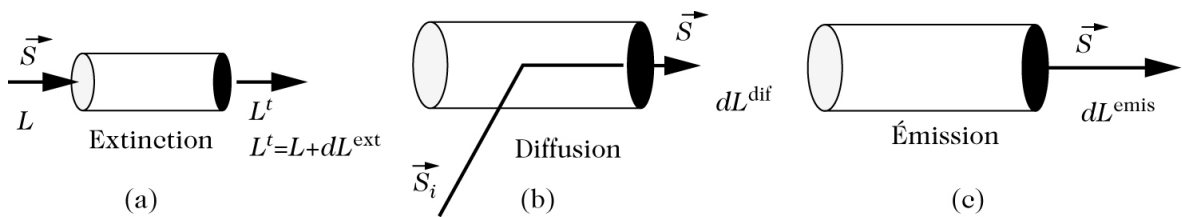


Fig. 3.2 - Les différents processus radiatifs décrivant le rayonnement atmosphérique : extinction, diffusion et émission. D'après Delmas (2005)

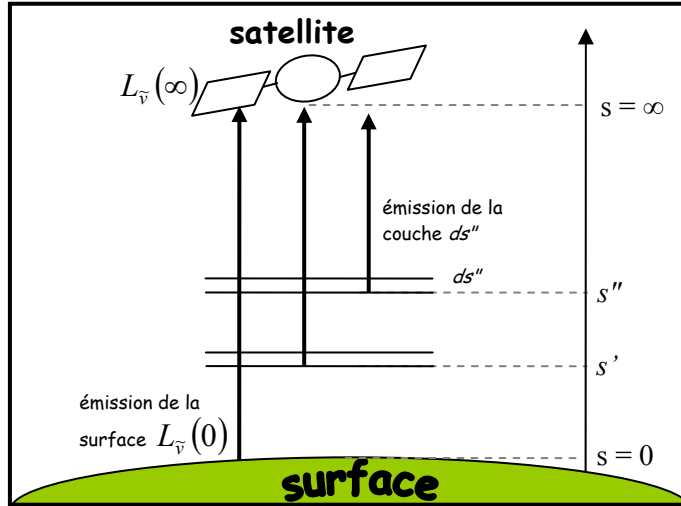


Fig. 3.3 - Illustration de la télédétection spatiale en visée au nadir du rayonnement IR. Les couches atmosphériques schématisent la présence de constituants atmosphériques qui absorbent dans le domaine spectral de l'IR. L'atmosphère est considérée plan-parallèle.

Nous considérons maintenant le cas particulier suivant : le cas d'une observation spatiale dans l'infrarouge thermique et en visée au nadir (cas de l'observation IASI), comme celui illustré sur la figure 3.3. Dans la majeure partie du domaine spectral de l'infrarouge, la source de rayonnement prépondérante est la surface de la Terre. On peut donc, en première approximation, négliger la contribution du rayonnement solaire. D'autre part, pour ce type de rayonnement, les processus de diffusion peuvent être considérés négligeables. Les processus prépondérants sont donc l'émission de la surface de la Terre et des couches de l'atmosphère ainsi que l'absorption et l'émission par les molécules atmosphériques, les aérosols et les nuages. La forme locale de l'équation du transfert radiatif s'écrit alors :

$$\frac{\partial L_{\bar{\nu}}(s)}{\partial s} = -\sigma_{\bar{\nu}}^{abs} (L_{\bar{\nu}}(s) + J_{\bar{\nu}}(s)) \quad (3.4)$$

A l'équilibre thermodynamique local (valable dans la troposphère et dans la basse stratosphère), la fonction source est identique à la fonction de Planck à la température T du milieu :

$$J_{\bar{\nu}} \equiv B_{\bar{\nu}}(T) \quad (3.5)$$

La forme intégrée de l'équation du transfert radiatif s'écrit alors :

$$L_{\bar{\nu}}(s) = L_{\bar{\nu}}(0) \exp(-\tau_{\bar{\nu}}(s,0)) + \int_0^s B_{\bar{\nu}}(T_{s'}) \exp(-\tau_{\bar{\nu}}(s,s')) \alpha_{\bar{\nu}}^{abs}(s') ds' \quad (3.6)$$

où l'épaisseur optique $\tau_{\bar{\nu}}(s,s')$ entre les points de coordonnées s et s' le long du trajet suivi par le rayonnement est définie par :

$$\tau_{\bar{\nu}}(s,s') = \int_{s'}^s \sigma_{\bar{\nu}}^{abs}(s'') ds'' \quad (3.7)$$

Le premier terme de l'équation 3.6 traduit la propagation dans le milieu du rayonnement incident (au point $s = 0$). Par suite des processus d'absorption, le faisceau est atténué d'un facteur :

$$Tr_{\bar{\nu}}(s,0) = \exp(-\tau_{\bar{\nu}}(s,0)) \quad (3.8)$$

qu'on appelle transmittance du milieu de 0 à s .

Le second terme traduit la contribution à l'intensité au point s de toutes les couches élémentaires situées entre 0 et s . L'émission d'une couche d'épaisseur ds' est atténuée d'un facteur :

$$Tr_{\bar{\nu}}(s,s') = \exp(-\tau_{\bar{\nu}}(s,s')) \quad (3.9)$$

résultant de l'absorption entre s' et s de la luminance émise au point s' .

En dérivant par rapport à s et s' l'expression générale de la transmittance :

$$Tr_{\bar{\nu}}(s,s') = \exp\left(-\int_{s'}^s \alpha_{\bar{\nu}}(s'') ds''\right) \quad (3.10)$$

on obtient :

$$\frac{\partial Tr_{\bar{\nu}}(s,s')}{\partial s} = -\alpha_{\bar{\nu}}^{abs}(s) Tr_{\bar{\nu}}(s,s') \quad (3.11)$$

$$\frac{\partial Tr_{\bar{\nu}}(s,s')}{\partial s'} = \alpha_{\bar{\nu}}^{abs}(s') Tr_{\bar{\nu}}(s,s') \quad (3.12)$$

La forme intégrée de l'équation du transfert radiatif pour un rayonnement infrarouge émis par la surface terrestre du bas vers le haut de l'atmosphère en s peut alors s'écrire :

$$L_{\bar{\nu}}(s) = L_{\bar{\nu}}(0) Tr_{\bar{\nu}}(s,0) + \int_0^s B_{\bar{\nu}}(T_{s'}) \frac{\partial Tr_{\bar{\nu}}(s,s')}{\partial s'} ds' \quad (3.13)$$

En supposant que la contribution de la surface de la Terre au rayonnement mesuré est négligeable par rapport à celle de l'atmosphère (Rodgers, 2000) et en considérant que le sommet de l'atmosphère est à l'infini, l'équation 3.13 peut se réécrire :

$$L_{\bar{\nu}}(\infty) = \int_0^\infty B_{\bar{\nu}}(T_{s'}) \frac{\partial Tr_{\bar{\nu}}(\infty,s')}{\partial s'} ds' \quad (3.14)$$

L'équation 3.14 montre que la luminance dépend de deux termes découplés : la distribution verticale de la température (premier terme) et la distribution verticale des constituants atmosphériques (deuxième terme). Ainsi, si le profil vertical d'un constituant est connu, et quasi constant, tel que le CO_2 , alors une mesure de spectres de luminances permet de déterminer le profil vertical de température. De même, lorsque le profil de température est connu, les concentrations de constituants peuvent être déduites à partir des mesures de spectres.

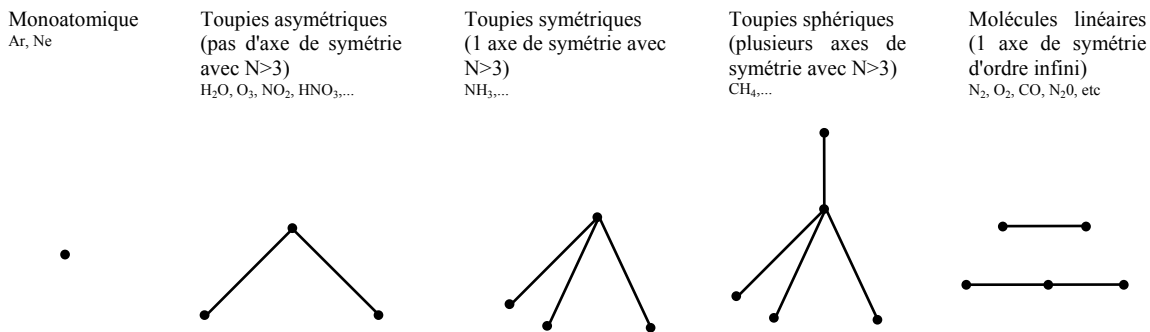


Fig. 3.4 - Classification des molécules

3.1.3 Interaction rayonnement-matière

Nous venons d'établir l'équation du transfert radiatif qui permet de déterminer le rayonnement, émis par la surface de la Terre et par l'atmosphère, et mesuré depuis l'espace. Cette section consacrée à une description spectroscopique de ces deux processus (émission et absorption) va nous permettre d'avoir une idée de l'information contenue dans les spectres atmosphériques mais également de la composition de l'atmosphère.

Une molécule atmosphérique est caractérisée par une énergie interne qui se présente sous la forme suivante (Delmas, 2005) :

$$E = E_c + E_e + E_v + E_r \quad (3.15)$$

où E_c est l'énergie cinétique due à l'agitation thermique, E_e l'énergie électronique associée au mouvement des électrons, E_v l'énergie de vibration due à la vibration des noyaux autour de leur position d'équilibre et E_r l'énergie de rotation due à la rotation d'ensemble de la molécule autour de son centre de masse. En première approximation, on peut ne considérer que les trois dernières formes d'énergie. Celles-ci sont quantifiées, c'est-à-dire qu'elles ne peuvent prendre que certaines valeurs bien déterminées et qu'elles dépendent des caractéristiques des molécules, plus précisément des niveaux d'énergie. Elles sont organisées de la manière suivante :

$$E_{\text{électronique}} \geq E_{\text{vibration}} \geq E_{\text{rotation}} \quad (3.16)$$

Le processus d'émission ou d'absorption d'un photon par une molécule correspond à une transition entre deux niveaux d'énergie discrets. La différence d'énergie obtenue est reliée à la longueur d'onde λ (ou au nombre d'onde $\tilde{\nu}$) selon la formule suivante :

$$\Delta E = \Delta E_e + \Delta E_v + \Delta E_r = h\tilde{\nu} = h/\lambda \quad (3.17)$$

Chaque molécule possède ainsi un certain nombre de transitions possibles (dépendant de la longueur d'onde) qui donnent naissance à un spectre de raies qui lui est propre. Selon le domaine de longueur d'onde, on peut distinguer trois types de spectres :

- Les spectres électroniques qui sont généralement observés dans l'ultra-violet et le visible.

- Les spectres de vibration-rotation pour lesquels les énergies électroniques ne changent pas ($\Delta E_e=0$) et qui couvrent le visible, l'infrarouge proche et l'infrarouge.
- Les spectres de rotation pour lesquels $\Delta E_v=\Delta E_r=0$ et qui apparaissent dans le domaine des micro-ondes et de l'infrarouge lointain.

Dans ce travail, nous nous intéressons seulement à des observations de **l'ozone** dans **l'infrarouge**. Nous allons donc nous focaliser sur la structure des spectres de rotation-vibration de l'ozone.

Les molécules se répartissent en cinq familles : celle des molécules monoatomiques et quatre familles de molécules polyatomiques. Leur classification, fondée sur les propriétés de symétrie de la molécule (figure 3.4), permet d'avoir une idée de la structure d'un spectre. Pour une molécule polyatomique possédant N noyaux ($N>2$), il existe $3N-6$ degrés de liberté associés aux vibrations de la molécule et $3N-5$ si la molécule est linéaire du fait de la perte d'un degré de liberté de rotation. L'ozone, molécule triatomique non-linéaire ($N=3$) possède donc trois modes de vibrations, communément notés ν_1 , ν_2 , ν_3 et représentés sur la figure 3.5. A ces trois modes de vibration, sont associées des bandes d'absorption dont les plus intenses sont la bande ν_3 entre 928 et 1244 cm^{-1} et la bande ν_1 entre 943 et 1273 cm^{-1} (Rothman et al., 2005).

Comme indiqué précédemment, les raies moléculaires sont le résultat d'une transition entre deux niveaux d'énergie. Ces transitions "obéissent" à des règles de sélection. Pour les spectres de rotation-vibration, les seules transitions possibles entre les niveaux de rotation sont celles qui satisfont $\Delta J=0, \pm 1$ où J est le nombre quantique de rotation. Ces transitions donnent lieu à une série de raies très rapprochées et regroupées en bandes, appelées aussi branches :

- $\Delta J=-1$ correspond à la branche P
- $\Delta J=1$ correspond à la branche R
- $\Delta J=0$ (correspondant à une transition vibrationnelle dans laquelle l'énergie de rotation est inchangée) correspond à la branche Q.

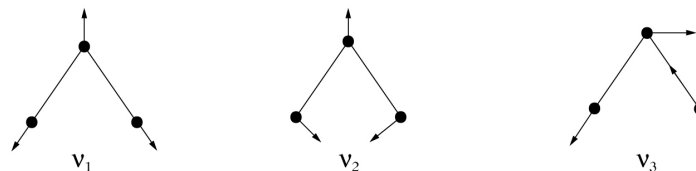


Fig. 3.5 - Modes de vibration des molécules triatomiques non linéaires telles que l'ozone. D'après Delmas (2005)

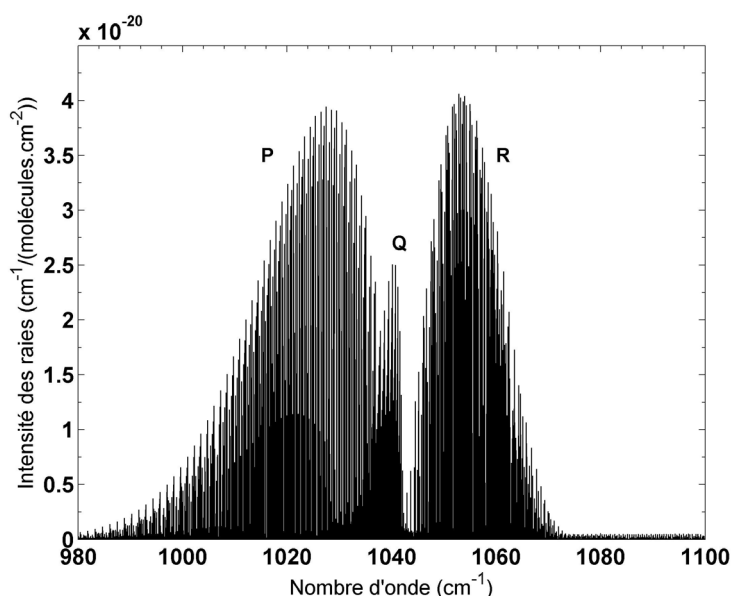


Fig. 3.6 - Spectre d'absorption (en section efficace) des bandes ν_1 et ν_3 de l'ozone à 296 K extrait de la base de données spectroscopique HITRAN 2004 (Rothman et al, 2005).

La télédétection des molécules atmosphériques nécessite de connaître très précisément les paramètres permettant de calculer leurs raies d'absorption. Pour cette raison, des bases de données comprenant les paramètres spectroscopiques des molécules ont été développées. Il existe actuellement deux bases de données principales : HITRAN (High-Resolution Transmission molecular absorption database) (Rothman et al, 2005) et GEISA (Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques) (Jacquinet-Husson et al., 2003). La figure 3.6 illustre une portion du spectre théorique de l'ozone issue de la base de données HITRAN 2004 et correspondant aux bandes ν_1 et ν_3 . C'est un spectre de rotation-vibration typique centré en 1042 cm^{-1} et caractérisé par les branches P, Q et R.

Si l'on veut déduire d'un spectre la température ou encore les concentrations des molécules atmosphériques, la seule connaissance de la position des raies que nous venons de traiter n'est pas suffisante. Il est nécessaire de connaître d'autres paramètres tels que l'intensité des raies mais aussi leur forme. En théorie, une raie spectrale est un pic de Dirac au nombre d'onde $\tilde{\nu}$. En pratique, les raies n'ont pas un nombre d'onde parfaitement déterminé mais s'étalent sur un domaine spectral. En fait elles subissent plusieurs élargissements qui peuvent être d'origine :

- naturelle : cet élargissement est dû à la durée de vie limitée des niveaux d'énergie impliqués dans les transitions. Son origine vient du principe d'incertitude d'Heisenberg qui relie la durée de vie Δt d'un niveau donné et l'énergie ΔE selon l'expression suivante :

$$\Delta E \Delta t = h/2\pi \text{ soit encore } h \Delta \tilde{\nu} \Delta t = h/2\pi$$

où h est la constante de Planck et $\Delta \tilde{\nu}$ la largeur de la raie. Lors de la transition entre deux niveaux d'énergie, au nombre d'onde $\tilde{\nu}$, une incertitude associée à

l'absorption (ou à l'émission) entraîne un élargissement des raies de type lorentzien qui est inversement proportionnel à la durée de vie des niveaux d'énergie.

- Doppler : cet élargissement, dû à la vitesse d'agitation thermique u des molécules, induit un changement du nombre d'onde lié à l'effet Doppler :

$$\Delta\tilde{\nu} = \tilde{\nu}_0 \frac{u}{c} \quad (3.18)$$

Dans ce cas, la largeur de la raie est proportionnelle à la température.

- collisionnelle : cet élargissement est dû aux collisions entre les molécules qui perturbent les niveaux d'énergie. Cet effet est d'autant plus grand que le nombre de molécules impliquées et leur vitesse sont importants. Ces derniers dépendant de la pression P et de la température T entraînent un élargissement collisionnel proportionnel à PT^n (n étant un facteur de dépendance en température compris entre 0 et 1) qui est donc plus important dans les basses couches de l'atmosphère.

L'effet d'un élargissement collisionnel de type lorentzien est plutôt visible au niveau des ailes de la raie alors que l'élargissement Doppler devient prépondérant au sommet de la raie, comme le montre la figure 3.7 (figure de gauche).

Lorsque les élargissements Doppler et collisionnels sont du même ordre de grandeur, le profil de raie devient un profil de Voigt qui est une combinaison des profils Doppler et lorentzien. La figure 3.7 (figure de droite) schématisant l'allure des différents profils en fonction de l'altitude montre que l'élargissement collisionnel domine à basse altitude alors qu'à haute altitude, la pression étant plus faible, l'élargissement Doppler devient prépondérant. Ainsi, les raies spectrales contiennent une information sur la distribution verticale des molécules absorbantes.

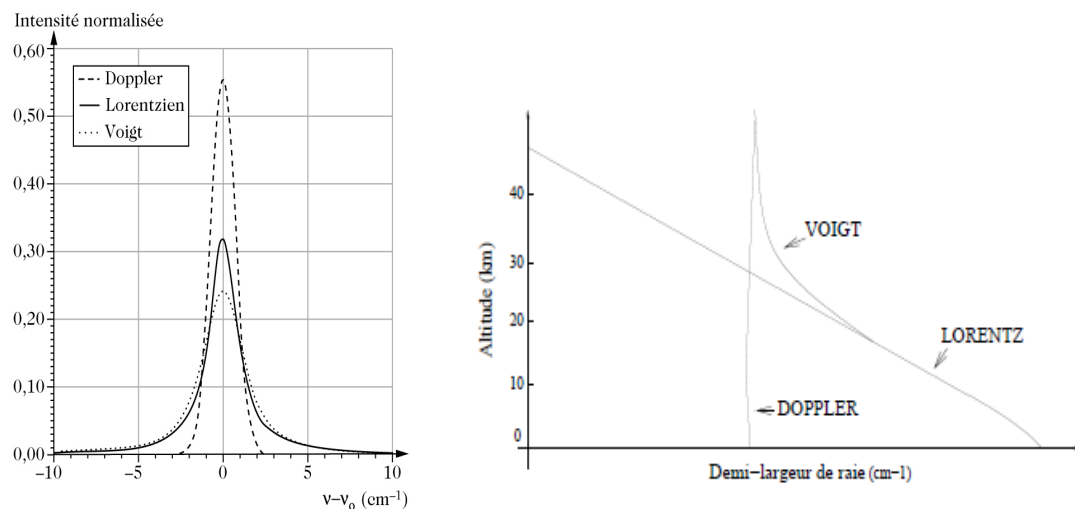


Fig. 3.7 - (gauche) Comparaison des profils Lorentz, Doppler et de Voigt calculés pour une demi-largeur de raie à mi-hauteur identique (1 cm^{-1}). D'après Delmas (2005); (droite) schéma qualitatif de l'importance relative des différents profils de raies en fonction de l'altitude (Müller, 1984).

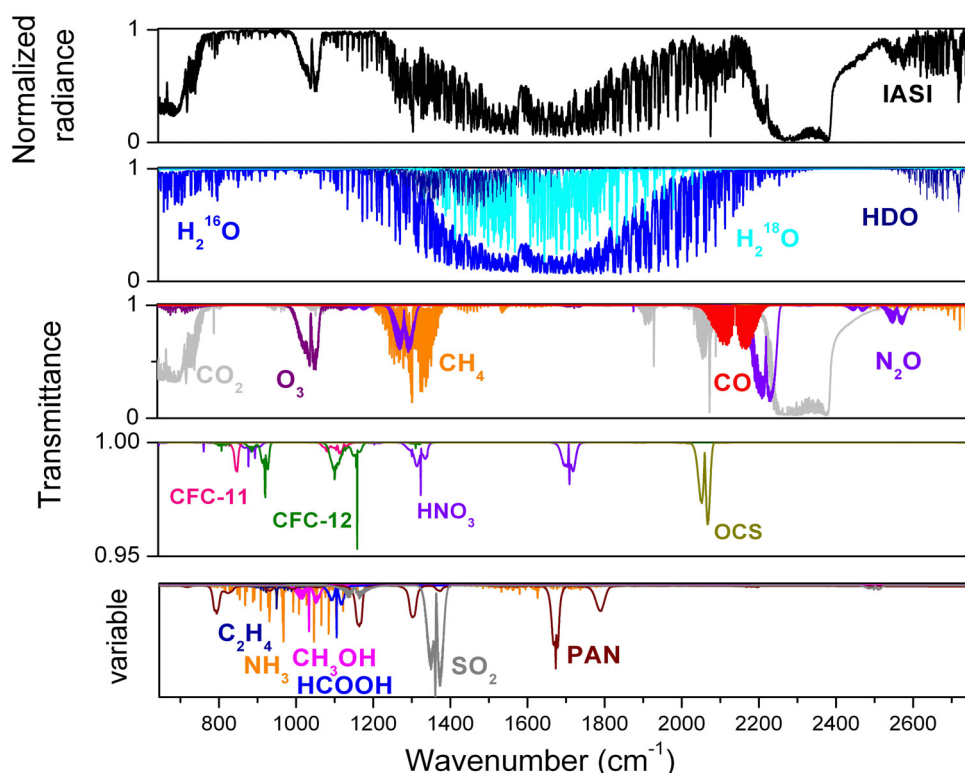


Fig. 3.8 - Spectre atmosphérique (en transmittance) enregistré dans le domaine spectral 600-2800 cm^{-1} par l'instrument IASI (en haut); simulations des contributions en absorption des molécules absorbant fortement (au milieu) et faiblement (en bas, avec une échelle variable). D'après Clerbaux et al. (2009)

Un autre phénomène moléculaire, dont la nature n'est encore pas très bien comprise mais qui apparaît dans les spectres atmosphériques, doit être pris en compte. C'est ce que l'on appelle le continuum d'absorption ou d'émission. Ce phénomène se trouve pour H_2O dans tout le domaine spectral et également dans certaines régions pour le CO_2 comme vers 2400 cm^{-1} (modélisation empirique par le facteur χ). Il est dû aux collisions dont l'effet contribue à l'élargissement des raies. En première approximation, la forme d'une raie élargie par les collisions est décrite par un profil lorentzien. Or en réalité la somme de toutes les contributions des ailes des raies "lointaines" crée un continuum plus ou moins intense.

La figure 3.8 illustre un exemple de spectre de luminances normalisées¹ mesuré par l'instrument IASI (c.f. section 3.3) dans le domaine de l'infrarouge avec une résolution spectrale de 0.5 cm^{-1} (Clerbaux et al., 2009). Ce spectre contient la signature spectrale d'un grand nombre de molécules atmosphériques. Les principales molécules absorbant dans ce domaine spectral sont identifiées en effectuant des simulations de transfert radiatif. La molécule qui absorbe le plus dans l'atmosphère est la vapeur d'eau, H_2O , dont la bande d'absorption ν_2 et le continuum d'absorption recouvrent la majorité du domaine spectral. Les bandes d'absorption du CO_2 , CH_4 , O_3 , CO , N_2O sont également clairement

¹ Luminance divisée par la fonction de Planck localement

identifiables. En particulier pour l'ozone, on peut observer différentes bandes d'absorption dont la plus intense (et la mieux isolée) est celle qui est centrée vers 1042 cm^{-1} . C'est cette région spectrale qui sera utilisée pour l'inversion des concentrations d'ozone (c.f. chapitre 4). De récents travaux ont montré qu'il est possible d'extraire les concentrations des molécules atmosphériques à partir de mesures IR, notamment à partir des mesures fournies par l'instrument IASI (Eremenko et al., 2008; Boynard et al., 2009; Crevoisier et al., 2009a et b; Fortems-Cheney et al., 2009; George et al., 2009; Herbin et al., 2009; Keim et al., 2009; Razavi et al., 2009; Turquety et al., 2009).

Le spectre comprend également de plus faibles signatures spectrales correspondant à l'absorption de HNO_3 , OCS , CFC-12 , CFC-11 , SO_2 , PAN , NH_3 , CH_3OH , HCOOH et C_2H_4 . Certaines de ces molécules peuvent seulement être détectées au-dessus de sources d'émission ou de panaches tels que le SO_2 au voisinage des volcans (Clarisse et al., 2008) et les composés organiques volatils tels que HCOOH , CH_3OH , C_2H_4 , et le PAN au voisinage des feux de biomasse (Coheur et al., 2009). L'acide nitrique (HNO_3) peut également être détecté comme l'ont montré Wespes et al. (2007, 2009). Tous ces composés absorbent dans la fenêtre atmosphérique $800\text{-}1200\text{ cm}^{-1}$, où l'absorption de la vapeur d'eau est réduite.

Les aérosols provenant des tempêtes de sable, des éruptions volcaniques ou les nuages (cirrus) se manifestent principalement dans la fenêtre $700\text{-}1300\text{ cm}^{-1}$ (Clerbaux et al., 2009). La contribution des aérosols est généralement faible, souvent de type continuum, mais peut atteindre 2 à 3% dans la région qui nous intéresse pour l'ozone ($980\text{-}1080\text{ cm}^{-1}$) (Turquety, 2003).

3.2 Rôle du contraste thermique

3.2.1 Définition

Dans le cas d'instruments satellitaires utilisant le domaine de l'infrarouge thermique pour sonder l'atmosphère, le contraste thermique est un paramètre critique pour l'observation de la couche limite atmosphérique, région directement touchée par les phénomènes de pollution. Le contraste thermique entre la surface et le sommet de la couche limite atmosphérique détermine jusqu'à quel point l'instrument satellitaire peut "voir" les constituants émis près de la surface. Ce paramètre est directement lié à la différence de température entre la surface et la première couche atmosphérique qui se réverbère dans le spectre de luminances enregistré par l'instrument satellitaire (figure 3.9).

Le matin, la Terre commence à absorber le rayonnement solaire ultra-violet dans une région spectrale pour laquelle l'atmosphère est relativement transparente (c'est-à-dire qu'il y a très peu absorption ou d'émission par les molécules atmosphériques). La surface se réchauffe et réémet un rayonnement IR vers l'atmosphère. Au coucher du Soleil, la Terre continue de réémettre et se refroidit à un rythme qui dépend fortement du type de surface, de l'altitude, etc. De manière générale, la Terre se réchauffe et se refroidit plus vite que l'atmosphère. Une conséquence de ces processus est l'omniprésence des variations diurnes du contraste thermique qui peuvent être différentes d'un endroit à l'autre. En règle générale, le contraste thermique est plus marqué pendant la journée que la nuit.

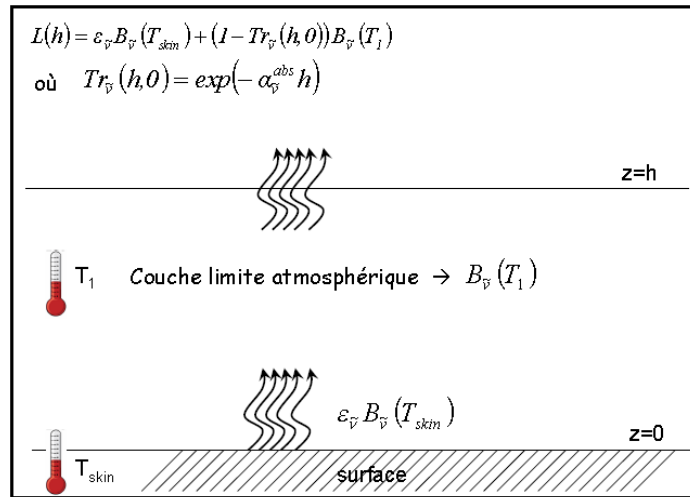


Fig. 3.9 - Le spectre de luminances mesuré par un instrument à bord d'un satellite est le résultat de l'absorption et de l'émission atmosphérique par différentes couches de l'atmosphère. D'une importance cruciale pour l'étude de la couche limite, le contraste thermique est la différence (en luminance) induite par la différence de température entre la température de surface (T_{skin}) et une température de référence dans la couche limite (T_1).

3.2.2 Le contraste thermique au-dessus de l'Europe

Dans cette section, la variabilité du contraste thermique au-dessus de l'Europe est analysée afin d'évaluer où et quand les instruments sondant dans l'infrarouge thermique sont sensibles à la couche limite. J'ai analysé plus précisément les distributions de températures à la surface (T_{skin}) et à 10 m (T_{10m}) ainsi que des hauteurs de la couche limite provenant des analyses ECMWF. La figure 3.10 représente la distribution des contrastes thermiques (différence entre T_{skin} et T_{10m}) pour juillet 2007 (gauche) et janvier 2008 (droite), au-dessus de l'Europe à 9:00 et 21:00 (heure UTC). Ces périodes de temps ont été choisies car elles correspondent aux mesures du matin et du soir (heure locale), fournies par l'instrument IASI. La distribution des contrastes thermiques a également été analysée à 15:00, heure où le maximum d'ozone est relevé. La figure illustre l'importante variabilité spatiale et temporelle du contraste thermique. Les maxima sont observés pendant la journée (9:00 et 15:00) en juillet ainsi qu'au-dessus des continents. D'autre part, la figure montre que le contraste thermique est très faible à 21:00; il est même négatif au-dessus des continents. Ces résultats indiquent que seules les observations IR obtenues la journée sont utiles pour l'étude de la couche limite et donc pour l'étude de la pollution.

La figure 3.11 représente les variations de la hauteur de la couche limite au-dessus de l'Europe pour la même période (juillet 2007 et janvier 2008). Ces distributions montrent la bonne corrélation entre le contraste thermique et la hauteur de la couche limite. Plus le contraste thermique est important, plus la couche limite est élevée, avec un léger décalage temporel. Les variations de la hauteur de la couche limite sont également plus importantes en juillet au-dessus des continents, pendant la journée, ce qui correspond à la période et aux endroits où les épisodes de pollution en ozone apparaissent.

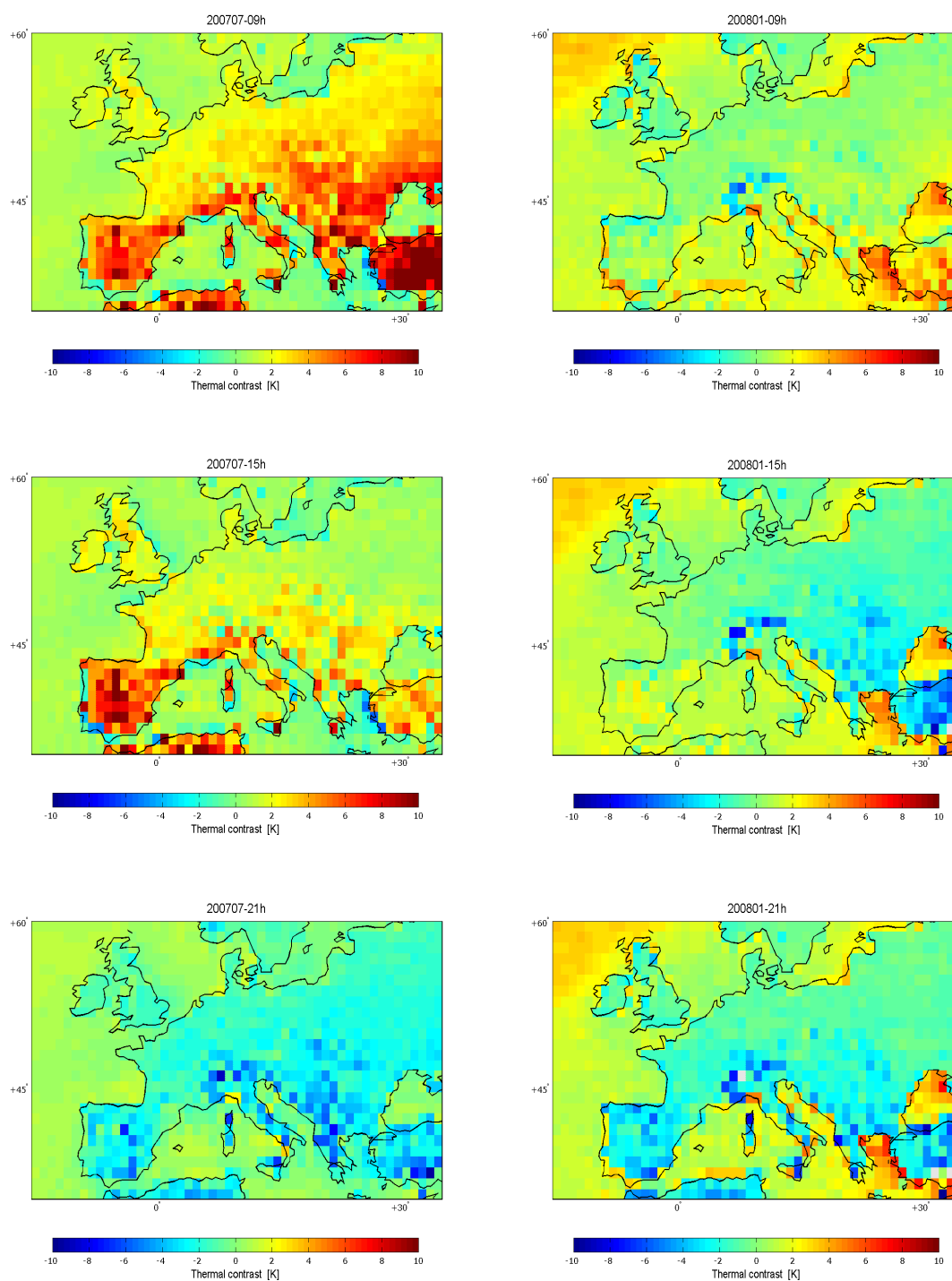


Fig. 3.10 - Distribution moyenne des contrastes thermiques (différence entre la température de surface et celle à 10 m) déduits des champs de températures ECMWF, au-dessus de l'Europe à 9:00, 15:00, 21:00 (heure UTC) pour juillet 2007 (gauche) et janvier 2008 (droite).

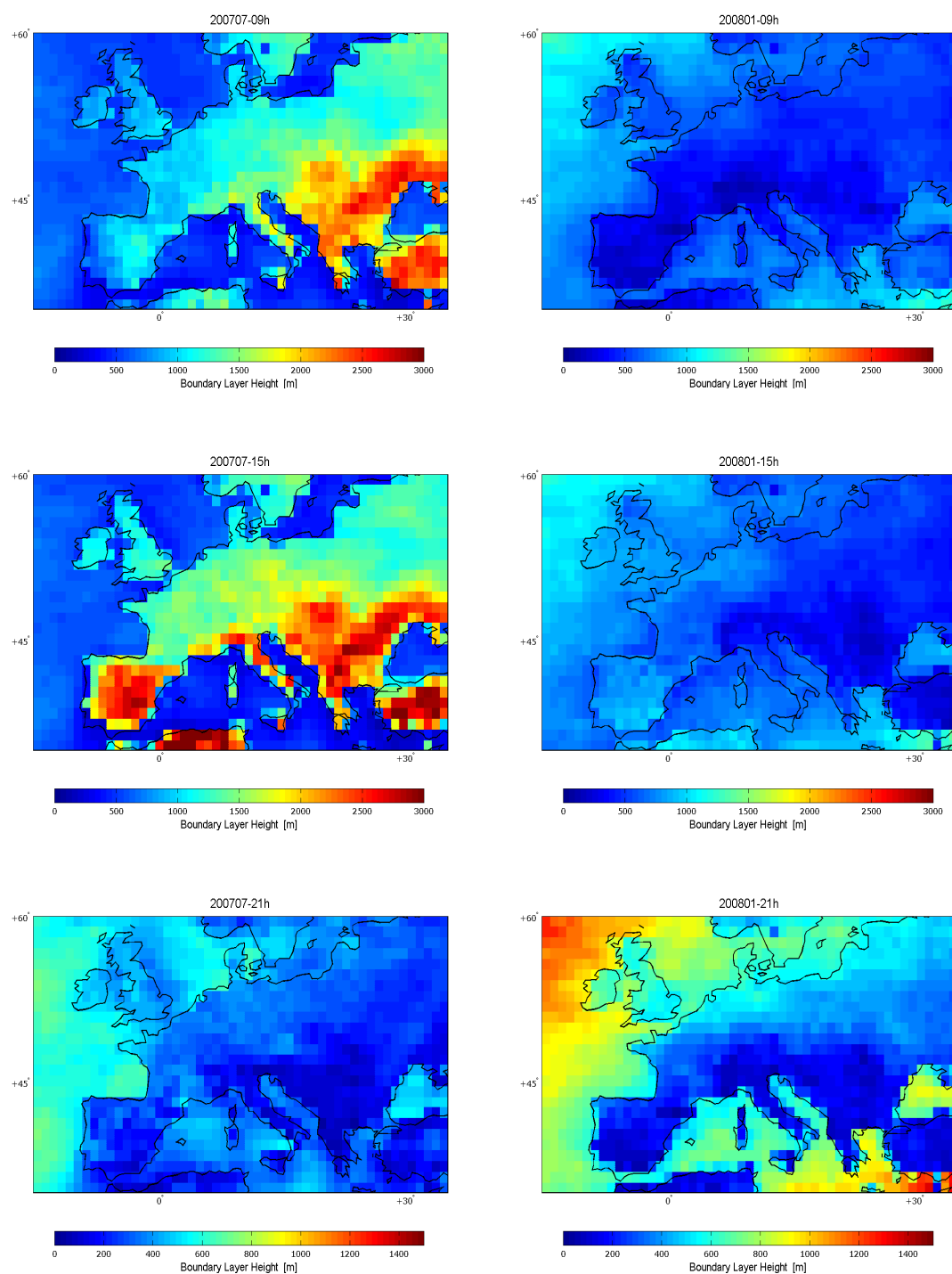


Fig. 3.11 - Distribution moyenne des hauteurs de la couche limite, provenant des analyses ECMWF, au-dessus de l'Europe à 9:00, 15:00 et 21:00 (heure UTC) pour juillet 2007 (gauche) et janvier 2008 (droite).

3.3 Inversions de spectres

Contrairement aux instruments *in situ*, tels que ceux installés dans les stations de surface, aux instruments aéroportés ou aux ballons sonde, qui permettent la mesure directe d'une variable géophysique (la concentration d'un constituant ou le profil de température), les instruments spatiaux mesurent l'intensité du rayonnement électromagnétique après son passage dans l'atmosphère. Comme nous l'avons décrit dans la partie précédente, l'équation du transfert radiatif permet de calculer le spectre de luminances émis par le système Terre-atmosphère à partir de notre connaissance de l'état de l'atmosphère (profil de température, profils de constituants atmosphériques) et des caractéristiques de l'instrument. Le transfert radiatif est décrit par ce que l'on appelle le *modèle direct*. En fait, ce que l'on cherche à résoudre, c'est le *modèle inverse* qui consiste à déterminer la meilleure estimation de l'état de l'atmosphère à partir des mesures de spectres de luminances. Dans notre cas, il s'agit de déterminer la distribution verticale de l'ozone à partir de la mesure d'un spectre contenant les signatures d'émission et d'absorption de ce gaz dans l'IR.

Dans le cas d'observations satellitaires, la mesure seule ne suffit pas à déterminer parfaitement tous les paramètres du modèle. L'information qu'elle contient est limitée non seulement par les caractéristiques de l'instrument telles que sa résolution spectrale, la géométrie d'observation et le bruit sur les mesures mais aussi par le fait que certaines composantes du profil atmosphérique observées ne contribuent pas au spectre mesuré. On ne peut donc inverser un profil atmosphérique seulement avec un nombre limité d'éléments indépendants d'information. On dit que le *problème inverse* est un problème mal posé, c'est-à-dire qu'il n'a pas de solution unique. Afin de réduire l'espace des possibilités de façon à aboutir à une solution unique, il est nécessaire de contraindre le problème en ajoutant une information additionnelle déterminée par notre connaissance *a priori* de la solution, qui peut provenir de climatologies, de modèles ou de profils mesurés par d'autres instruments.

Il existe de nombreuses méthodes d'inversion. Celles-ci sont généralement basées sur une approche statistique Bayésienne et sur la minimisation d'une fonction de coût. Nous présentons dans la suite deux méthodes d'inversion qui seront utilisées tout au long de cette thèse et qui reposent sur deux approches complémentaires basées sur des notions physique et statistique : l'estimation optimale et le réseau de neurones.

3.3.1 La méthode d'estimation optimale

Parmi les méthodes physiques basées sur le transfert radiatif, la plus couramment utilisée est la Méthode d'Estimation Optimale (OEM pour Optimal Estimation Method en anglais) développée par Rodgers (1976). Cette méthode permet en outre de caractériser les inversions (en donnant le contenu en information du profil inversé) mais également d'établir un bilan d'erreur détaillé grâce au formalisme développé par Rodgers (1990, 2000). Ce formalisme peut s'appliquer à d'autres méthodes d'inversion comme par exemple la méthode de régularisation de Tikhonov (Tikhonov, 1963).

Nous proposons dans cette section d'exposer le formalisme introduit par Rodgers qui permet de caractériser le contenu en information d'un champ atmosphérique et d'établir un bilan d'erreurs (associées à l'inversion et à l'instrument) complet.

Le modèle direct et le modèle inverse

Considérons \mathbf{y} un vecteur (de dimension m) comprenant les mesures, par exemple les luminances mesurées depuis l'espace, et \mathbf{x} un vecteur état (de dimension n) que l'on cherche à déterminer (par exemple le profil vertical d'ozone). Ces deux quantités sont reliées par le modèle du transfert radiatif, correspondant au *modèle direct*, selon l'expression suivante :

$$\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \varepsilon \quad (3.19)$$

L'équation 3.19 montre que le modèle direct dépend d'un certain nombre de paramètres \mathbf{b} définissant l'état de l'atmosphère dont certains ne sont pas parfaitement connus. Ce vecteur peut inclure le profil de température ou d'autres constituants atmosphériques, les propriétés de la surface (émissivité et température), les caractéristiques de l'instrument (fonction de réponse spectrale, résolution) ainsi que les paramètres spectroscopiques. ε représente l'erreur de mesure due au bruit instrumental. On remarquera que cette équation est une autre forme de l'équation du transfert radiatif établie dans la section 3.1.2 (équation 3.6).

Le modèle direct peut être linéarisé autour d'un état de référence $(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}})$, où \mathbf{x}_a représente une estimation *a priori* de l'état réel \mathbf{x} et $\hat{\mathbf{b}}$ la meilleure estimation des paramètres \mathbf{b} selon :

$$\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}}) = \frac{\partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \hat{\mathbf{b}})}{\partial \mathbf{x}} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \frac{\partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \hat{\mathbf{b}})}{\partial \mathbf{b}} (\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \varepsilon = \mathbf{K}_x (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{K}_b (\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \varepsilon \quad (3.20)$$

Cette équation introduit les matrices des fonctions de poids de dimension $(m \times n)$, également appelées matrices des jacobiens du modèle direct :

- $\mathbf{K}_x = \partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \hat{\mathbf{b}}) / \partial \mathbf{x}$ représente la sensibilité du modèle direct (c'est-à-dire de la mesure) à l'état réel \mathbf{x} ;
- $\mathbf{K}_b = \partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \hat{\mathbf{b}}) / \partial \mathbf{b}$ représente la sensibilité du modèle direct aux paramètres du modèle direct \mathbf{b} .

Le modèle inverse \mathbf{R} consiste à déterminer $\hat{\mathbf{x}}$, la meilleure estimation de l'état réel recherché \mathbf{x} , à partir des mesures \mathbf{y} et de $\hat{\mathbf{b}}$. Il peut s'écrire :

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{R}(\mathbf{y}, \mathbf{b}, \mathbf{x}_a) \quad (3.21)$$

En combinant les équations 3.19 et 3.21, on obtient la relation entre l'état observé $\hat{\mathbf{x}}$ et l'état réel \mathbf{x} :

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{R}(\mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \varepsilon, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a) \quad (3.22)$$

On peut considérer \mathbf{R} comme une fonction de transfert décrivant l'ensemble du système d'observation, incluant l'instrument et la méthode d'inversion. La compréhension de cette fonction de transfert est fondamentale pour l'analyse d'erreur et pour la caractérisation du système d'observation (instrument et méthode d'inversion). En utilisant l'équation 3.20, l'équation 3.22 devient :

$$\hat{x} = \mathbf{R}[\mathbf{F}(x_a, \hat{b}) + \mathbf{K}_x(x - x_a) + \mathbf{K}_b(b - \hat{b}) + \varepsilon, \hat{b}, x_a] \quad (3.23)$$

La linéarisation du modèle inverse par rapport à son premier argument y donne ensuite :

$$\hat{x} = \mathbf{R}[\mathbf{F}(x_a, \hat{b}), \hat{b}, x_a] + \mathbf{G}_y[\mathbf{K}_x(x - x_a) + \mathbf{K}_b(b - \hat{b}) + \varepsilon] \quad (3.24)$$

où $\mathbf{G}_y = \partial \mathbf{R} / \partial y$ représente la sensibilité de l'inversion à la mesure y . En réarrangeant l'équation 3.24, le modèle inverse linéarisé s'écrit :

$$\hat{x} - x_a = [\mathbf{R}(\mathbf{F}(x_a, \hat{b}), \hat{b}, x_a) - x_a] + \mathbf{A}(x - x_a) + \mathbf{G}_y \varepsilon_y \quad (3.25)$$

où

$$\mathbf{A} = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x} \quad (3.26)$$

est un opérateur, caractérisant la sensibilité de l'inversion à l'état réel et

$$\varepsilon_y = \mathbf{K}_b(b - \hat{b}) + \varepsilon \quad (3.27)$$

représente l'erreur associée aux différentes incertitudes.

Caractérisation des inversions

En faisant l'hypothèse du bon comportement de la méthode d'inversion (c'est-à-dire qu'aucun biais n'est introduit), on peut écrire :

$$\mathbf{R}(\mathbf{F}(x_a, \hat{b}), \hat{b}, x_a) = x_a \quad (3.28)$$

A partir de l'équation 3.25, on obtient l'équation de caractérisation de Rodgers :

$$\hat{x} = x_a + \mathbf{A}(x - x_a) + \mathbf{G}_y \varepsilon_y \quad (3.29)$$

Cette équation relie le profil réel x et *a priori* x_a au profil inversé \hat{x} . Le second terme $\mathbf{A}(x - x_a)$ représente la façon dont le système d'observation, incluant l'instrument et la méthode d'inversion, lisse la différence entre le profil réel et le profil *a priori*. La matrice \mathbf{A} caractérise donc le système d'observation. Dans le cas de l'inversion d'un profil d'une variable géophysique sur n niveaux verticaux, \mathbf{A} est une matrice de dimension $(n \times n)$. Les lignes de \mathbf{A} sont appelées *fonctions de lissage* (Backus and Gilbert, 1970), ou encore *noyaux moyens* (*averaging kernels* en anglais). La valeur inversée au niveau i est une moyenne du profil réel pondérée par la ligne i de la matrice \mathbf{A} . Dans le cas d'un système d'observation "idéal", \mathbf{A} est une matrice identité \mathbf{I}_n et les fonctions de lissage sont représentées par des pics de Dirac, mais ce n'est généralement pas le cas. En réalité, ces fonctions sont étalées (figure 3.12); elles présentent un pic à l'altitude où l'inversion est la plus sensible et une largeur à mi-hauteur correspondant à la résolution verticale du système d'observation. Ce maximum de sensibilité dépend très largement de la forme des Jacobiens \mathbf{K} (même altitude de sensibilité maximale), c'est-à-dire de l'information contenue dans les spectres. Les fonctions de lissage permettent donc de bien caractériser les inversions, puisque non seulement leur forme indique la résolution verticale mais peut également être utilisée pour détecter une inversion aberrante.

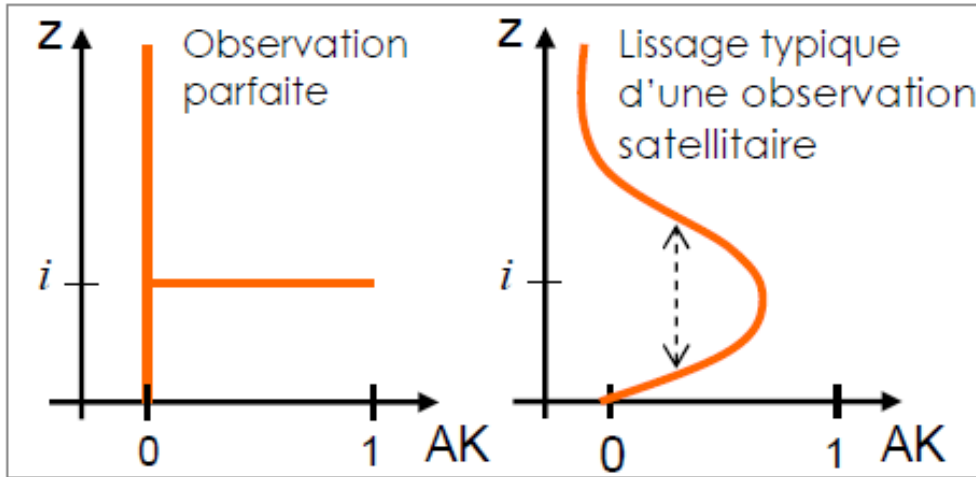


Fig. 3.12 - Allure des fonctions de lissage dans le cas d'une observation parfaite et d'une observation satellitaire.

La mesure contient un certain nombre d'éléments indépendants d'information qui peuvent être déterminés à partir de paramètres de diagnostic déduits de la matrice des fonctions de lissage \mathbf{A} (Rodgers, 2000). Une façon assez simple pour déterminer le contenu en information d'une mesure consiste en la décomposition en vecteurs propres et en valeurs propres de la matrice \mathbf{A} (Rodgers, 1990). Les éléments indépendants d'information sont les vecteurs propres de la matrice \mathbf{A} pour lesquels les valeurs propres associées sont proches de 1. Le nombre de degrés de liberté associé au signal, appelé DOFS (Rodgers, 2000) est déterminé par la trace de la matrice des fonctions de lissage \mathbf{A} (Rodgers, 2000):

$$d_s = \text{tr}(\mathbf{A}) \quad (3.30)$$

Analyse de l'erreur

En réarrangeant l'équation 3.29 et en la combinant à l'équation 3.27, la différence entre l'état inversé et l'état réel peut s'écrire (Rodgers, 2000) :

$$\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x} = (\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \mathbf{K}_b (\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \mathbf{G}_y \boldsymbol{\varepsilon} \quad (3.31)$$

Cette équation met en évidence les trois principales sources d'erreur sur les résultats de l'inversion. Le premier terme correspond à l'erreur de lissage, le second correspond aux incertitudes sur les paramètres du modèle direct et le troisième à l'erreur de mesure.

– Erreur de lissage

L'erreur de lissage, donnée par le terme $(\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)$, ne peut pas être estimée, l'état réel n'étant pas connu. Une information sur les statistiques de cette erreur peut par contre est obtenue en calculant la moyenne et la covariance d'un ensemble réel d'exemples connus et qui peuvent être décrits par l'information *a priori* \mathbf{x}_a et \mathbf{S}_a . Si l'on considère l'ensemble d'exemples choisi pour $\bar{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a$ (et \mathbf{S}_a la covariance associée) alors la moyenne

donnée par $(\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)(\bar{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a)$ est égale à zéro. Ainsi la covariance d'erreur de lissage par rapport à un état moyen $\bar{\mathbf{x}}$ est définie par :

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_s &= E\left((\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)(\mathbf{x} - \bar{\mathbf{x}})(\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)^T(\mathbf{x} - \bar{\mathbf{x}})^T\right) \\ &= (\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)E\left((\mathbf{x} - \bar{\mathbf{x}})(\mathbf{x} - \bar{\mathbf{x}})^T\right)(\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)^T \\ &= (\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)\mathbf{S}_a(\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)^T\end{aligned}\quad (3.32)$$

avec E l'opérateur d'espérance mathématique (moyenne) et T la transposée.

– *Erreur associée aux incertitudes sur les paramètres du modèle direct*

Cette erreur peut être aléatoire ou systématique, ou plus généralement peut varier sur n'importe quelle échelle de temps. Elle est associée aux incertitudes sur les paramètres du modèle direct et est donnée par $\mathbf{G}_y\mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}})$. La covariance d'erreur pour cette contribution s'écrit :

$$\mathbf{S}_f = \mathbf{G}_y\mathbf{K}_b\mathbf{S}_b\mathbf{K}_b^T\mathbf{G}_y^T \quad (3.33)$$

où $\mathbf{S}_b = E\left((\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}})(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}})^T\right)$ est la matrice de covariance d'erreur sur les paramètres \mathbf{b} .

– *Erreur de mesure*

Cette erreur donnée par $\mathbf{G}_y\boldsymbol{\varepsilon}$ est due au bruit radiométrique $\boldsymbol{\varepsilon}$ sur les mesures \mathbf{y} ; la matrice de covariance associée s'écrit :

$$\mathbf{S}_m = \mathbf{G}_y\mathbf{S}_\varepsilon\mathbf{G}_y^T \quad (3.34)$$

avec \mathbf{S}_ε la matrice de covariance du bruit radiométrique qui est généralement aléatoire et diagonale si les éléments du vecteur sont des mesures indépendantes.

L'analyse de chacun des termes du problème inverse linéarisé permet donc une caractérisation précise du contenu en information du profil inversé et de l'erreur associée à partir du calcul des matrices fondamentales \mathbf{K}_x , \mathbf{G}_y et \mathbf{A} (Rodgers, 1990; Rodgers, 2000). Une telle analyse est nécessaire pour permettre l'utilisation et l'exploitation des inversions puisqu'elle renseigne sur leur résolution et leur précision.

3.3.2 Le réseau de neurones

Principe de réseau de neurones

La technique des réseaux de neurones est une méthode d'inversion basée, tout comme l'OEM, sur une approche Bayésienne qui résout le problème d'inversion à l'aide de fonctions de transfert (Rumelhart, 1986; Lippmann, 1987; Widrow, 1985) mais d'une manière différente. Ces modèles sont schématiquement inspirés du fonctionnement de neurones biologiques réels et reposent sur des méthodes d'apprentissage statistiques (Rosenblatt, 1958). Contrairement aux méthodes classiques telles que l'OEM, le réseau de neurones n'a pas besoin d'utiliser un modèle direct dans le processus d'inversion.

Le réseau de neurones est constitué d'un ensemble de fonctions de transfert élémentaires, les neurones, qui sont inter-connectés par des "poids" (coefficients synaptiques). L'utilisation d'un réseau de neurones se décompose en deux grandes phases : une phase d'apprentissage et une phase opérationnelle. Pendant la phase d'apprentissage, le réseau de neurones estime de manière optimale une fonction de transfert reliant deux ensembles de données (entrée et sortie) en ajustant les valeurs des poids à attribuer à chaque liaison entre les neurones. Ce qu'on appelle la phase opérationnelle, c'est simplement une fonction analytique qui est entièrement déterminée grâce à la phase d'apprentissage.

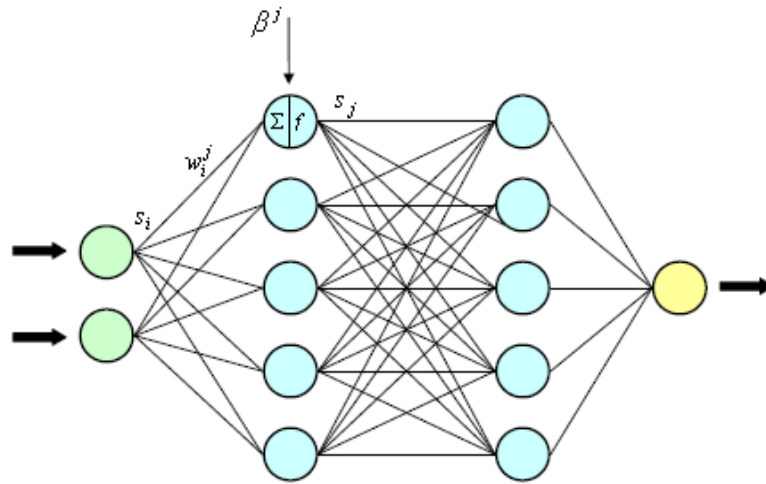


Fig. 3.13 - Schéma de principe d'un réseau de neurone multi-couches.

L'application des premiers modèles de réseaux de neurones, initialement développés pour résoudre des problèmes de classification (Rosenblatt, 1958), a rapidement été restreinte en raison de l'impossibilité de résoudre des problèmes non linéaires (Minsky and Papert, 1969). Ce n'est qu'en 1986, qu'une nouvelle génération de réseaux de neurones (appelé perceptron multicouches), capables de traiter des problèmes extrêmement non-linéaires est apparue (Rumelhart, 1986). Ce type de réseaux de neurones, schématisé sur la figure 3.13, a été largement utilisé dans le domaine des sciences atmosphériques, notamment pour l'inversion de variables géophysiques comme le champ de vent ou le profil atmosphérique de constituants (Thiria et al., 1993; Hadji-Lazaro, 1999; Müller et al., 2003; Turquety et al., 2004, Crevoisier et al., 2009a et b).

Un réseau de neurone multicouches est en général composé d'une succession de couches (3 au minimum) dont chacune prend en entrée les sorties de la précédente, comme l'illustre la figure 3.13. En revanche, les neurones d'une même couche ne peuvent pas être reliés. Considérons le neurone i connecté aux m neurones de la couche précédente, alors la sortie s_j du neurone j est déterminée selon l'expression :

$$s_j = f\left(\sum_{i=1}^m w_i^j s_i + \beta^j\right) \quad (3.35)$$

où f représente la fonction d'activation du neurone qui peut être une fonction linéaire ou sigmoïde, et β^j le biais appliqué au neurone qui permet de déplacer le seuil d'activation de la fonction f .

Concept d'un réseau de neurone adapté aux observations spatiales

Il a été montré qu'une architecture adaptée à l'inversion de données géophysiques est un réseau de neurones multicouches à deux couches cachées (Thiria et al., 1993; Hadji-Lazaro, 1999). L'inversion de données géophysiques étant un problème non linéaire, des fonctions d'activation de type sigmoïde, comme la tangente hyperbolique, sont généralement utilisées pour chacun des neurones des couches cachées :

$$f(x) = \tanh(x) = \frac{e^x - e^{-x}}{e^x + e^{-x}} \quad (3.36)$$

alors que des fonctions d'activation linéaires sont utilisées pour la couche de sortie :

$$g(x) = x \quad (3.37)$$

Dans le cas de l'inversion de profils atmosphériques ou de colonnes intégrées à partir de mesures à distance, la phase d'apprentissage consiste à construire une base d'apprentissage contenant à la fois les mesures (spectres) et les états correspondants (profils atmosphériques) en estimant de manière optimale tous les paramètres de la fonction de transfert. Cette base contient la physique du problème et constitue l'information *a priori* de l'inversion. Elle nécessite donc l'utilisation d'un modèle direct de transfert radiatif. Une fois cette phase d'apprentissage achevée (convergence entre sortie calculée et sortie désirée), la fonction de transfert est fixée. Il suffit ensuite de donner les entrées du réseau (première couche) qui sont constituées des luminances mesurées, ainsi que d'autres paramètres nécessaires à l'inversion tels que la température de surface et le profil de température. En sortie de réseau (dernière couche), on obtient les concentrations du constituant atmosphérique à différents niveaux d'altitudes ou des colonnes intégrées.

Un exemple de fonction de transfert globale à modéliser peut s'écrire (Turquety, 2003; Turquety et al., 2004) :

$$\hat{c}(p) = g \left[\sum_{k=1}^{S_2} w_{pk}^3 \cdot f \left[\sum_{j=1}^{S_1} w_{kj}^2 \cdot f \left(\sum_{i=1}^m w_{ji}^1 \cdot y(i) + \sum_{i=m+1}^{m+l} w_{ji}^1 \cdot \hat{b}(i-m) + \beta_j^1 \right) + \beta_k^2 \right] + \beta_p^3 \right], \quad (3.38)$$

$p = 1, \dots, n_c$

où w_{ji}^1 , w_{kj}^2 , w_{pk}^3 représentent les matrices de poids des connections avec $i = 1, \dots, (m+l)$ les éléments de la couche d'entrée (m luminances y et l températures \hat{b}), $j = 1, \dots, S_1$ les neurones de la 1^{ère} couche cachée, $k = 1, \dots, S_2$ les neurones de la 2^{ème} couche cachée et $p = 1, \dots, n_c$ les neurones de la couche de sortie. Les biais associés aux neurones sont les composantes des vecteurs β_j^1 , β_k^2 , β_p^3 .

Contrairement à l'OEM qui nécessite de modéliser une fonction de transfert pour chaque mesure, le réseau de neurones présente l'avantage de modéliser une fonction de transfert globale, applicable à toutes les observations. Ainsi le réseau de neurones permet de résoudre le problème inverse en un temps de calcul minimal. En fait, tout le travail fourni dans la technique des réseaux de neurones est associé à la phase d'apprentissage,

compliquée et longue, qui nécessite la construction d'une base d'apprentissage la plus précise et représentative possible. En revanche, cette technique ne permet pas la caractérisation des inversions comme les méthodes physiques. La qualité de cette méthode dépendra fortement de l'ensemble de profils utilisés dans la phase d'apprentissage. D'autre part les réseaux de neurones présentent un grand nombre de propriétés nécessaires au traitement des mesures spatiales : ils sont facilement modulables et très efficaces en phase opérationnelle (Turquety, 2003).

3.4 L'instrument IASI

L'instrument IASI (Cayla, 1993 ; Blumstein et al., 2004; Schlüssel et al, 2005; Phulpin et al., 2002, 2007; Clerbaux et al, 2007, 2009) a été développé par le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) dans le cadre d'une coopération avec EUMETSAT. C'est un sondeur troposphérique de bonne résolution spectrale, composé d'un spectromètre à transformation de Fourier qui enregistre en visée au nadir le rayonnement infrarouge émis par la surface de la Terre et l'atmosphère, conçu dans le but d'observer la troposphère et la basse stratosphère pour la prévision météorologique opérationnelle et l'étude du climat et de la chimie atmosphérique.

IASI fait partie intégrante du Système Polaire d'EUMETSAT (EPS) comprenant une série de trois satellites météorologiques européens en orbite polaire, nommés MetOp (Météorologie Opérationnelle) et développés par l'Agence Spatiale Européenne (ESA) pour le compte d'EUMETSAT. Le système a été conçu pour assurer une couverture de 14 ans, chaque satellite ayant une durée de vie prévue de 5 ans. Le premier satellite, MetOp-A, a été lancé en 2006 et les lancements des deux autres satellites (MetOp-B et C) sont prévus pour 2012 et 2016.

Après une brève présentation du principe de mesure d'un spectromètre à transformation de Fourier, instrument qui permet de fournir la distribution spectrale du rayonnement, nous allons décrire la mission IASI/MetOp ainsi que les caractéristiques de l'instrument.

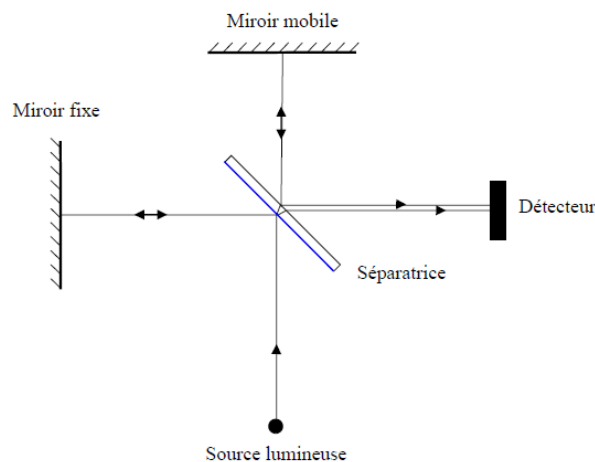


Fig. 3.14 - Schéma de principe de l'interféromètre de Michelson.

3.4.1 Le spectromètre à transformation de Fourier

IASI est un spectromètre à transformation de Fourier basé sur le principe de l'interféromètre de Michelson dont le montage optique est schématisé sur la figure 3.14. Le rayonnement émis par une source arrive sur une lame semi-réfléchissante, appelée séparatrice qui divise le faisceau en deux. L'un des faisceaux est dirigé vers un miroir fixe alors que l'autre faisceau est dirigé vers un miroir mobile. Après réflexion sur les deux miroirs, les deux rayons reviennent sur la lame séparatrice qui va redonner deux faisceaux se propageant vers le détecteur. Les deux rayons qui n'ont pas parcouru le même trajet présentent ce que l'on appelle une différence de chemin optique : ils peuvent donc interférer avec une intensité maximale lorsque les deux faisceaux sont en phase (c'est-à-dire lorsque la différence de chemin optique est un multiple de la longueur d'onde du faisceau) et nulle lorsque les rayons sont en opposition de phase (c'est-à-dire lorsque la différence de chemin optique est un multiple impair de la demi-longueur d'onde du faisceau). La quantité mesurée sur le détecteur correspond à l'intensité du rayonnement en fonction de la différence de chemin optique δ introduite entre les deux rayons. Il s'agit d'un interférogramme, noté $I(\delta)$. Dans le cas d'un rayonnement ayant un spectre continu $B(\tilde{\nu})$, l'interférogramme est donné par :

$$I(\delta) = \frac{1}{2} \int B(\tilde{\nu}) [1 + \cos(2\pi\tilde{\nu}\delta)] d\tilde{\nu} \quad (3.39)$$

L'interférogramme $I(\delta)$ se compose d'un terme constant auquel s'ajoute un terme modulé proportionnel à $\cos(2\pi\tilde{\nu}\delta)$. Seule la partie modulée de l'interférogramme (partie dépendant de δ) est intéressante pour la spectroscopie. En ignorant les termes constants, on définit généralement l'interférogramme par :

$$I(\delta) = \int_0^{\infty} B(\tilde{\nu}) \cos(2\pi\tilde{\nu}\delta) d\tilde{\nu} \quad (3.40)$$

La figure 3.15 représente la partie centrale de l'interférogramme d'un spectre atmosphérique typique.

Sachant que la transformée de Fourier (TF) d'une fonction B s'écrit :

$$TF(B(\tilde{\nu})) = \int_{-\infty}^{\infty} B(\tilde{\nu}) e^{-2i\pi\tilde{\nu}\delta} d\tilde{\nu} = \int_{-\infty}^{\infty} B(\tilde{\nu}) (\cos(2\pi\tilde{\nu}\delta) - i\sin(2\pi\tilde{\nu}\delta)) d\tilde{\nu} \quad (3.41)$$

l'expression 3.39 montre que $I(\delta)$ peut être considéré comme la partie réelle de la transformée de Fourier du spectre $B(\tilde{\nu})$ ($TF(B)$). Il suffit donc de calculer la transformée de Fourier inverse de l'interférogramme $I(\delta)$ afin de restituer le spectre du rayonnement incident c'est-à-dire l'intensité en fonction du nombre d'onde :

$$TF^{-1}(I(\delta)) = B(\tilde{\nu}) = \int_{-\infty}^{\infty} I(\delta) e^{2i\pi\tilde{\nu}\delta} d\delta \quad (3.42)$$

L'équation 3.40 représente, en théorie, un spectre idéal complet, en supposant un miroir mobile ayant un déplacement infini. Or en pratique, les différences de marche possibles sont limitées $-\Delta \leq \delta \leq \Delta$.

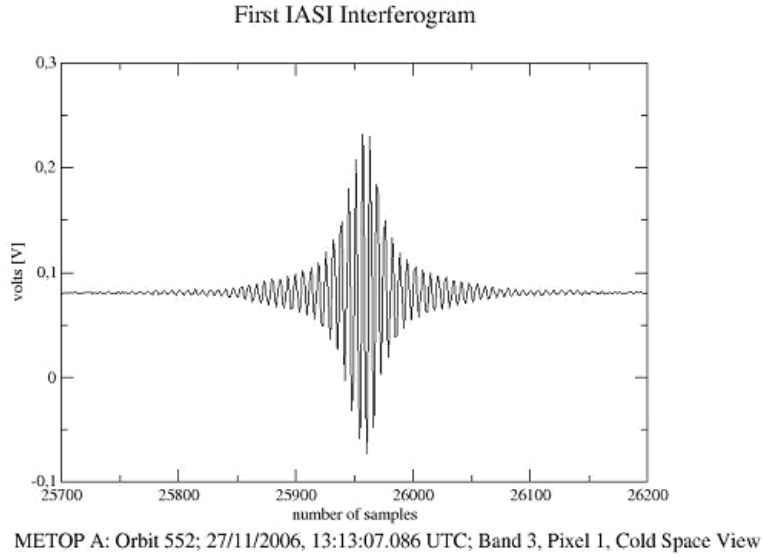


Fig. 3.15 - Interférogramme typique enregistré par l'instrument IASI. (http://smc.cnes.fr/IASI/Fr/premiers_res.htm)

L'interférogramme réellement mesuré est le produit de l'interférogramme idéal par une fonction rectangle de largeur 2Δ :

$$I_{\text{mesuré}}(\delta) = I(\delta) \Pi\left(\frac{\delta}{2\Delta}\right) \quad (3.43)$$

Après application de la transformée de Fourier de l'interférogramme de l'équation 3.41, le spectre résultant s'écrit :

$$B_{\text{mesuré}}(\tilde{\nu}) = B(\tilde{\nu}) * 2\Delta \text{sinc}(2\pi\tilde{\nu}\Delta) \quad \text{où} \quad \text{sinc}(2\pi\tilde{\nu}\Delta) = \frac{\sin(2\pi\tilde{\nu}\Delta)}{2\pi\tilde{\nu}\Delta} \quad (3.44)$$

Du fait de la course limitée du miroir mobile, le spectre mesuré est convolué par une fonction sinus cardinal de résolution spectrale $\Delta\tilde{\nu} = 1/\Delta$. Cette fonction dite fonction d'appareil, illustrée sur la figure 3.16, a le défaut de présenter des lobes secondaires dont l'amplitude continue à être importante même lorsqu'on s'éloigne de la position de la raie incidente. Une raie de faible amplitude peut donc être masquée par une raie voisine plus intense. En pratique, afin de faire disparaître "les pieds" de la fonction sinus cardinal, l'interférogramme $I(\delta)$ est multiplié par une fonction de poids $w(\delta)$ qui tend vers 0 lorsque δ atteint la différence de marche maximale ($\pm \Delta$). L'application de cette fonction de poids, dite fonction d'apodisation, a l'avantage de diminuer l'amplitude des "pieds" de la fonction d'appareil mais a l'inconvénient de dégrader la résolution spectrale de l'instrument. Le choix de cette fonction de poids résulte d'un compromis entre ces deux effets antagonistes.

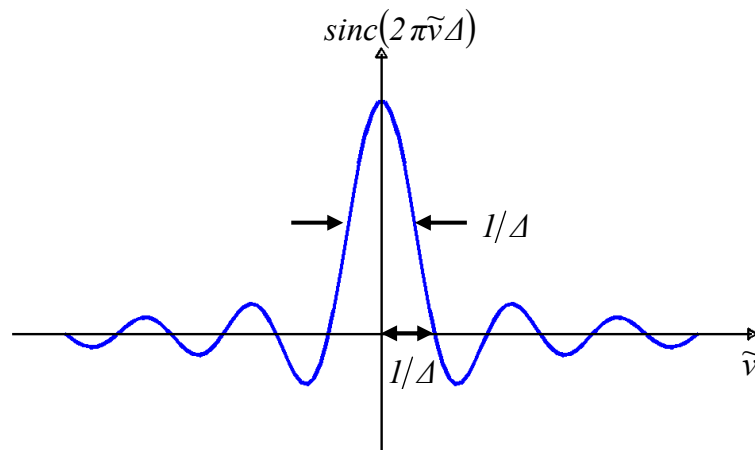


Fig. 3.16 - Fonction de réponse d'un interféromètre caractérisé par une différence de marche optique maximale finie égale à 2Δ . La largeur au pied de la raie restituée est égale à $1/\Delta$.

3.4.2 La mission IASI/MetOp

L'instrument IASI, embarqué sur le satellite MetOp-A a été lancé avec succès le 19 octobre 2006 de Baïkonour (Kazakhstan) à bord de la fusée russe Soyouz. Conçu pour fournir des mesures de spectres atmosphériques dans le domaine de l'infrarouge thermique, il est constitué d'un spectromètre à transformation de Fourier associé à un imageur permettant de détecter les nuages. Associé aux autres instruments de nouvelle génération embarqués sur la plateforme satellitaire MetOp (figure 3.17), il constitue un maillon essentiel du suivi de l'environnement et du climat global. En effet, il fournit d'une part des mesures de profils améliorés de température et d'humidité atmosphérique mais également des mesures de concentrations de gaz traces tels que l'ozone, la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone mais aussi le monoxyde de carbone ou encore le méthane.

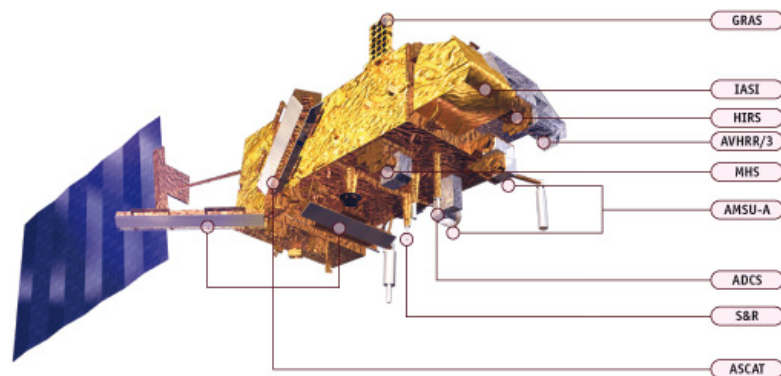


Fig. 3.17 - Instruments à bord du satellite MetOp. (<http://www.eumetsat.int>)

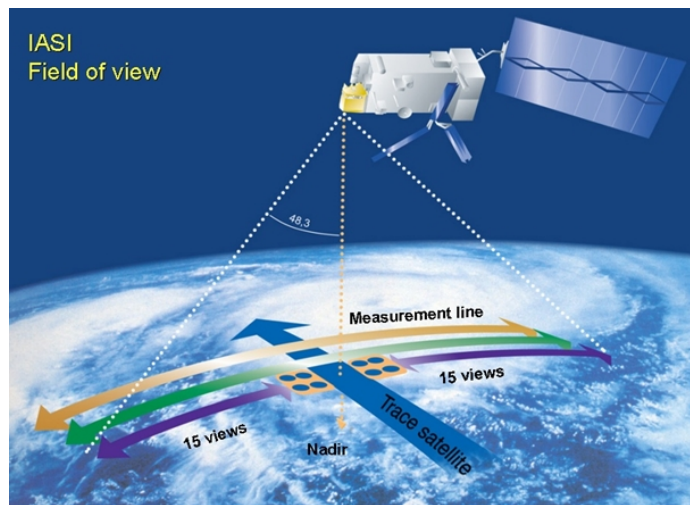


Fig. 3.18 - Schéma du champ de vue de l'instrument IASI et caractéristique de balayage. (<http://smc.cnes.fr/IASI/fov.htm>)

IASI est le fruit d'une coopération entre le CNES et EUMETSAT. Le CNES a été responsable de la conception de l'instrument, qui a commencé en 1998. Il assure également la responsabilité du développement du Logiciel de Traitement de Données (Data Processing Software) ainsi que du centre d'expertise technique à Toulouse où sont suivies les performances et la calibration de l'instrument IASI. Les autres instruments à bord de la plate-forme satellitaire MetOp sont opérés en orbite par EUMETSAT qui assure également le traitement opérationnel, l'archivage et la distribution des données à la communauté des utilisateurs. Les données sont mises à disposition en quasi temps réel à travers le système de dissémination EUMETCast.

Géométrie d'observation IASI

MetOp-A vole, en orbite polaire héliosynchrone légèrement inclinée (98.7°), à une altitude d'environ 817 km, avec deux passages à l'équateur à 9 h 30 et 21 h 30, heures locales. La durée d'une orbite est d'environ 101 minutes, et MetOp fait donc approximativement 14 révolutions par jour.

Le sondage au nadir est complété par un balayage dans un plan perpendiculaire à la trace du satellite. IASI effectue 2×15 visées le long de la ligne de mesure, espacées d'environ 3.3° et symétriques par rapport au nadir. L'axe optique se déplace donc avec un angle de balayage allant jusqu'à 48.3° de part et d'autre de la trace du satellite (ou du nadir), ce qui correspond à une fauchée (longueur de la ligne de mesure au sol) de 2×1100 km. Le balayage d'une ligne de mesure inclut, en plus des 30 visées vers le sol, les visées sur les cibles d'étalonnage et le retour à la position de départ; la durée du balayage est de 8 secondes. Pour chaque visée, le champ angulaire total de l'instrument est conique, avec un angle au sommet de 3.3° (soit 50 km au sol pour une scène au nadir). Il est analysé par une matrice composée de 2×2 pixels circulaires correspondant à un angle de 1.25° , ce qui correspond au sol à un pixel circulaire de 12 km de diamètre pour une visée au nadir. Le champ de vue de l'instrument IASI est représenté sur la figure 3.18.

Tab. 3.1 - Caractéristique et bandes spectrales de l'instrument IASI. D'après Clerbaux et al. (2009)

Bande	Intervalle spectral	Résolution	NEDT à 280 K	Nature du détecteur
1	645 - 1210 cm^{-1} 15.5 - 8.26 μm	0.35 cm^{-1}	< 0.2 K	Photoconducteur HgCdTe
2	1210 - 2000 cm^{-1} 8.26 - 5 μm	0.45 cm^{-1}	< 0.2 K (1210-1800 cm^{-1}) ~0.3 K (1800-2000 cm^{-1})	Photovoltaïque HgCdTe
3	2000 - 2760 cm^{-1} 5 - 3.62 μm	0.55 cm^{-1}	< 0.2 K (2000-2250 cm^{-1}) > 0.2 K (2250-2760 cm^{-1})	Photovoltaïque InSb

Caractéristiques instrumentales

IASI mesure le rayonnement infrarouge dans une gamme spectrale s'étendant de 645 cm^{-1} à 2670 cm^{-1} (15.5 à 3.62 μm), avec un échantillonnage constant de 0.25 cm^{-1} . Ce domaine spectral a été choisi afin de couvrir le pic de l'infrarouge thermique et notamment la bande du CO_2 avec la branche Q autour de 15 μm (utilisée pour les restitutions des profils de température), la bande de l'ozone autour de 9.6 μm , la bande de la vapeur d'eau ainsi que celle du méthane. Ce domaine contient également la région où la lumière solaire rétrodiffusée commence à apporter sa contribution (à partir de 2000 cm^{-1}). En outre, il est possible de restituer les propriétés des surfaces et des nuages à partir des fenêtres transparentes.

Afin d'optimiser les performances de l'instrument, le domaine spectral a été divisé en trois bandes, avec un détecteur spécifique à chacune des bandes. Les caractéristiques spectrales de l'instrument sont déterminées par la résolution spectrale et par la précision radiométrique. Cette dernière est spécifiée en termes d'écart de température équivalent au bruit (Noise Equivalent Temperature Difference en anglais, NEDT), pour une température de référence donnée de 280 K. La différence de marche optique maximale de IASI est de 2 cm, ce qui est l'équivalent d'une résolution spectrale variant de 0.35 à 0.5 cm^{-1} , selon la longueur d'onde. Le tableau 3.1 détaille les caractéristiques spectrales de l'instrument incluant sa résolution spectrale et sa précision radiométrique réelle, ainsi que le type de détecteur utilisé pour chaque bande spectrale.

Les spectres mesurés par l'instrument IASI sont d'une haute qualité radiométrique, comme l'indique la figure 3.19 illustrant le bruit radiométrique de IASI en termes de luminance et de température de brillance en fonction du nombre d'onde, calculé à partir d'un ensemble de spectres représentatifs (Clerbaux et al. 2009). La figure montre que les performances radiométriques de IASI sont meilleures que celles estimées avant le lancement de IASI et ce, d'un facteur 2 dans plusieurs gammes spectrales.

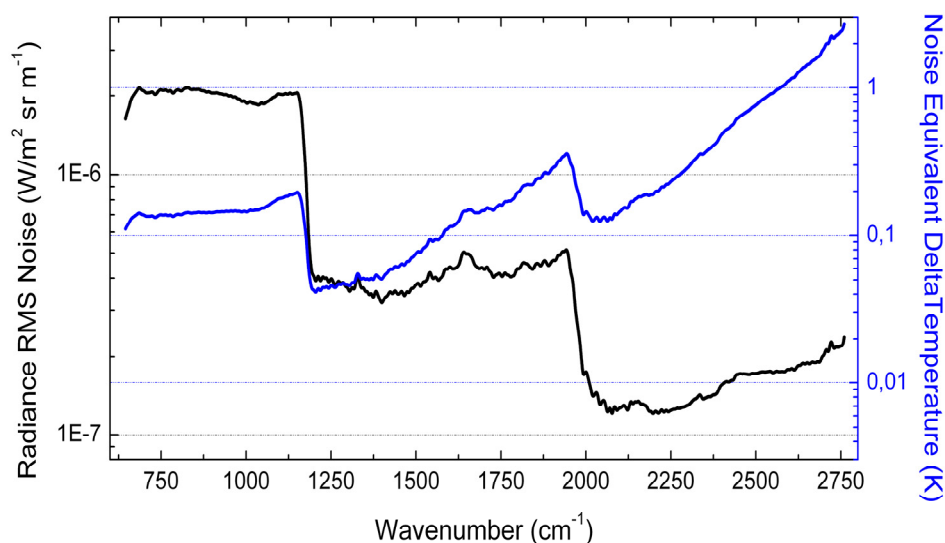


Fig. 3.19 - Bruit radiométrique IASI calculé à partir d'un jeu de spectres représentatifs, mesurés au-dessus d'une large gamme de latitudes. Les valeurs sont fournies en luminance ($\text{W}/(\text{m}^2 \text{ sr m}^{-1})$) et en différence de température équivalente pour une température de référence de 280 K.

Afin de corriger la réponse instrumentale (c'est-à-dire afin de supprimer les "pieds" de la fonction d'appareil), les produits standards IASI sont apodisés par une fonction gaussienne avec une largeur à mi-hauteur de 0.5 cm^{-1} qui correspond à la résolution spectrale après apodisation. Les caractéristiques du satellite MetOp et de l'instrument IASI sont résumées dans le tableau 3.2.

La chaîne de traitement IASI permet de générer des spectres atmosphériques calibrés et apodisés à partir des interférogrammes mesurés. Un premier traitement effectué à bord de l'instrument permet de réduire la quantité de données d'un facteur 30, de corriger les défauts de linéarité présents lors de la détection, de calculer l'inverse de la transformée de Fourier et enfin d'effectuer une calibration radiométrique sur les spectres obtenus qui constituent les données de niveau 0. Ces derniers sont ensuite transmis au segment sol (environ 3 heures après acquisition) qui effectue un traitement à trois niveaux :

- le niveau 1A comprend le décodage, une post-calibration radiométrique, une calibration spectrale et l'enregistrement commun des données IASI et AVHRR (instrument imageur multi-spectral également à bord de MetOp) à partir de la localisation et de la date;
- le niveau 1B consiste en le ré-échantillonnage des spectres de niveau 1A;
- le niveau 1C permet l'apodisation des spectres de niveau 1B (il permet d'obtenir une fonction de réponse spectrale de l'instrument nominale et constante sur tout le domaine spectral et pour les quatre pixels); il comprend également l'analyse des luminances AVHRR sur les pixels IASI.

Tab. 3.2 - Caractéristiques du satellite MetOp et de l'instrument IASI.

MetOp-A	Lancé le 19 octobre 2006
Altitude	~817 km
Orbite	Héliosynchrone polaire
Inclinaison	98.7° à l'équateur
Heure de passage (heure locale)	~9 h 30 (orbite descendante)
Durée d'une orbite	101 min
Cycle de répétition	29 jours (412 orbites)
IASI	Spectromètre à transformation de Fourier
Taille et poids	1.7 m ³ , 236 kg
Intervalle spectral	645 - 2760 cm ⁻¹
Résolution spectrale	0.3-0.5 cm ⁻¹ (0.5 cm ⁻¹ apodisé)
Bruit radiométrique	<0.1-0.2 K (650-1750 cm ⁻¹) 0.2-0.4 K (1750-2500 cm ⁻¹)
Champ de vue	50 km au nadir (3.33°) avec 4 pixels simultanés de 12 km de diamètre
Largeur de la fauchée	~2200 km au sol (48.3°), 120 pixels
Couverture globale de la Terre	Couverture globale 2 fois par jour
Débit de données	120 spectres de luminances toutes les 8 secondes ~1 300000 observations par jour
Durée de vie	5 ans

Depuis Juin 2007, les luminances de niveau 1C sont distribuées de manière opérationnelle via le système de dissémination de données d'EUMETSAT (EUMETCast). EUMETCast utilise les satellites de télécommunication géostationnaires à usage commercial pour transmettre des données et des produits à une vaste communauté d'utilisateurs.

En utilisant une procédure d'inversion des données de niveau 1, un certain nombre de variables géophysiques (profils de température, humidité, concentrations des gaz traces, propriétés des surfaces et des nuages, etc) appelées données de niveau 2 peuvent être déduites. EUMETCast distribue les produits de niveau 2 tels que les profils de température et d'humidité ainsi que les propriétés des surfaces et des nuages depuis septembre 2007 (Schlüssel et al., 2005), mais également les colonnes totales et partielles de gaz traces (ozone, monoxyde de carbone, méthane, dioxyde de carbone, dioxyde d'azote) depuis mars 2008 (August et al., 2009). Le tableau 3.3 résume les différents produits géophysiques de niveau 2 qui ont été obtenus à partir des mesures IASI.

Tab. 3.3 - Liste des produits disponibles à partir des mesures IASI avec la résolution verticale estimée (DOFS, information indépendante sur la verticale) ainsi que la précision (si disponible). Les espèces à longue et moyenne durée de vie sont observées dans chaque spectre alors que les espèces à courte durée de vie sont seulement détectables au voisinage d'événements spécifiques ou près de sources d'émission. Les références disponibles sont également précisées. D'après Clerbaux et al. (2009)

Espèces	Résolution verticale (DOFS)	Erreur (%)	Caractéristique des espèces	Références
Espèces à longue durée de vie (>10 ans)				
CO ₂	<1	NA	Fort absorbeur	Crevoisier et al. (2009a)
N ₂ O	<1	NA	Fort absorbeur	Ricaud et al. (2009)
CFC-11	<1	NA	peu absorbeur	
CFC-12	<1	NA	peu absorbant	
HCFC-11	NA	NA	peu absorbant	
OCS	<1	NA	peu absorbant	Shephard et al. (2009)
Espèces à durée de vie moyenne				
H ₂ O	5-6	15% (0-20 km)	Absorbeur dominant	Herbin et al. (2009)
HDO	3-4	30% (0-20 km)	Fort absorbeur*	Herbin et al. (2009)
H ₂ ¹⁸ O	3-4	NA	Fort absorbeur	Herbin et al. (2009)
CH ₄	~1	<2% (col. tot.)	Fort absorbeur*	Razavi et al. (2009)
				Crevoisier et al. (2009b)
O ₃	3-4	30% (0-6 km) 3% (col. tot.)	Fort absorbeur avec contamination stratosphérique importante	Eremenko et al. (2008) Boynard et al. (2009) Keim et al. (2009) Amato et al. (2009)
CO	1-2	10%		George et al. (2009) Turquety et al. (2009)
HNO ₃	~1	15% (col. tot.)	Peu absorbant avec contamination stratosphérique importante	Wespes et al. (2009)
Espèces à courtes durée de vie				
NH ₃		NA	Détecté près des feux et au-dessus de régions agricoles	Coheur et al. (2009) Clarisse et al. (2009)
CH ₃ COOH		NA	Détecté près des feux	Coheur et al. (2009)
HCOOH		NA	Détecté près des feux	Coheur et al. (2009)
C ₂ H ₄		NA	Détecté près des feux	Coheur et al. (2009)
SO ₂		NA	Détecté dans les panaches volcaniques pour des concentrations > 2 DU	Clarisse et al. (2008)
Aérosols				
Désertiques, volcaniques, nuageux (cirrus)	~1	NA		Clarisse, communication personnelle, 2009

* + absorption du rayonnement solaire rétrodiffusé.

3.5 Résumé et conclusions

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord établi l'équation du transfert radiatif qui permet de déterminer le rayonnement émis par le système Terre-atmosphère mesuré depuis l'espace. Cette équation fait intervenir les caractéristiques de l'atmosphère (émissivité de surface, température de surface, distribution verticale de la température atmosphérique, concentrations de gaz trace) mais également celles de l'instrument de mesure (fonction de réponse spectrale, bruit radiométrique).

Une étude sur le rôle du contraste thermique défini comme la différence de température entre la surface et la première couche atmosphérique a été réalisée. C'est un paramètre critique ayant un impact considérable sur la sensibilité des sondeurs infrarouges à la couche limite. Ce paramètre varie en fonction du lieu et du moment de la journée. Les valeurs les plus importantes (correspondant à une meilleure sensibilité des instruments mesurant dans l'infrarouge à la couche limite) sont observées pendant l'été, entre 12 h et 15 h, au-dessus des continents. Ces périodes de hautes sensibilités correspondent à celles d'apparition des épisodes de pollution. Ainsi on s'attend à ce que l'instrument IASI fournisse des mesures mieux résolues verticalement et plus précises lors de l'orbite du matin au-dessus des continents.

Nous avons vu que le rayonnement est composé de signatures spectrales (en émission et en absorption) organisées en bandes de raies. La caractérisation des raies a montré qu'une information sur la distribution verticale des molécules absorbantes peut être extraite. Pour remonter à cette information, il faut résoudre le *problème inverse* qui consiste à extraire des mesures de rayonnement les paramètres géophysiques recherchés (les concentrations d'ozone dans l'atmosphère dans notre cas). Le *problème inverse* est un problème complexe qui n'est pas entièrement résolu à partir de la mesure seule. Afin de contraindre ce problème, une information additionnelle déterminée par notre connaissance *a priori* de la solution doit être combinée à la mesure. Cette information *a priori* peut être issue soit de climatologies soit de profils mesurés par d'autres instruments. La résolution du problème inverse se fait par une technique dite d'inversion qui est déterminée par le type de contrainte utilisée et la manière dont celle-ci est imposée. Nous avons ensuite exposé les bases théoriques de deux techniques d'inversion qui seront utilisées au cours de ces travaux : la méthode d'estimation optimale et le réseau de neurones. Nous avons également présenté les éléments nécessaires à la caractérisation des inversions en termes de fonction de lissage et à l'analyse de l'erreur. En particulier nous avons introduit les principales sources d'incertitude que sont l'erreur de mesure, l'erreur de lissage et l'erreur sur les paramètres du modèle direct.

La dernière partie de ce chapitre a été dédiée à la description de l'instrument IASI, spectromètre à transformation de Fourier mesurant le rayonnement IR en visée au nadir et permettant l'observation de nombreuses molécules dans la troposphère avec une excellente couverture géographique.

Le chapitre suivant est consacré à l'inversion des concentrations d'ozone à partir des spectres IR mesuré par IASI, en utilisant les deux méthodes d'inversion décrites précédemment.

Chapitre 4

Inversion de l'ozone

Dans le cadre de la mission IASI, un algorithme d'inversion opérationnel utilisant les techniques des réseaux de neurones (*NN* pour Neural Network) a été développé au LATMOS pour la restitution des concentrations d'ozone, de monoxyde de carbone et de méthane (Hadj-Lazaro et al., 1999; Turquety et al., 2004). Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, cette technique présente l'avantage de permettre la modélisation statistique de fonctions de transfert non linéaires extrêmement complexes avec un grand nombre de paramètres en entrée (Thiria et al., 1993). Les réseaux de neurones sont par ailleurs facilement adaptables et très efficaces en phase opérationnelle, propriétés nécessaires pour le traitement des mesures satellitaires. Le développement de l'algorithme a été initié au cours de la thèse de Juliette Hadji-Lazaro (Hadj-Lazaro, 1999) pour l'inversion du monoxyde de carbone et du méthane à partir des mesures IMG (Hadj-Lazaro et al., 1999), puis a été poursuivi au cours de la thèse de Solène Turquety (Turquety, 2003) pour l'inversion de l'ozone (Turquety et al., 2002, 2004). Ce code, fournissant des concentrations précises avec un temps de calcul minimal a été implémenté dans le segment sol d'EUMETSAT (Turquety et al., 2004). Bien que l'architecture du code ait été conservée, la phase d'apprentissage a complètement été modifiée par EUMETSAT.

Par ailleurs, le LATMOS contribue au développement d'un code basé sur la Méthode d'Estimation Optimale (OEM) (Rodgers et al., 2000) (*Atmosphit*), qui a été mis au point par Daniel Hurtmans et Pierre-François Coheur à l'Université Libre de Bruxelles, pour restituer des profils de concentration et établir des bilans d'erreurs (Barret et al., 2005; Clerbaux et al., 2005; Coheur et al., 2005; Wespes et al., 2007; Clarisse et al., 2008; Boynard et al., 2009; Razavi et al., 2009). Bien que ce code présente une plus grande souplesse d'ajustement de certains paramètres (principalement émissivité et altitude), le temps de calcul pour inverser chaque spectre est plus important. Etant directement basé sur l'OEM, il permet en outre, d'une part, de caractériser les inversions en dérivant les fonctions de lissage associées à l'inversion et, d'autre part, d'estimer leur précision en quantifiant les contributions des différentes sources d'erreur. Ces deux informations, qui ont été introduites dans le chapitre précédent, sont nécessaires pour une utilisation optimale des données satellitaires, par exemple lors de leur assimilation dans un modèle de chimie et de transport ou dans le cadre d'inter-comparaison avec d'autres mesures indépendantes. Une version plus rapide, qui repose sur l'OEM mais qui utilise des tables de corrélations (LUT pour lookup tables en anglais) est en cours de développement.

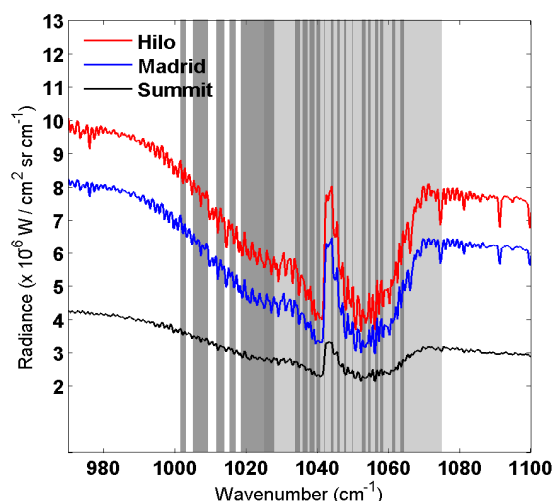


Fig. 4.1 - Spectres de luminances "sans nuage" mesurés par IASI autour de la bande d'absorption de l'ozone à $9.6\ \mu\text{m}$ enregistré au-dessus de Hilo (Hawaï, USA), Madrid (Espagne) et Summit (Groenland). Les spectres sont caractérisés par des températures de surface de 299.5, 287.1 et 255.5 K respectivement. Les régions en gris foncé représentent les canaux spectraux sélectionnés pour l'inversion de l'ozone avec le *NN* alors que la zone en gris clair représente le domaine spectral utilisé pour l'inversion de l'ozone avec *Atmosphit*.

Les deux algorithmes d'inversion utilisés au cours de cette thèse ont été appliqués aux spectres mesurés par l'instrument IASI, disponibles depuis début juin 2007 (via le site internet d'Ether, ether.ipsl.jussieu.fr). Un exemple de trois mesures IASI autour de la bande d'absorption de l'ozone est présenté sur la figure 4.1.

Au cours de ces travaux, j'avais directement à disposition les sorties du *NN*. En revanche, j'ai mis en œuvre les inversions réalisées avec le code *Atmosphit*. Ceci a impliqué notamment d'appliquer un filtre de nuage aux spectres IASI, de construire une matrice de covariance *a priori* de l'ozone, de fournir les données d'entrée (telles que les profils de pression, température, etc) et de paramétrer de manière optimale les inversions (bruit de mesure, domaine spectral, nombre de niveaux verticaux d'inversion utilisé, etc).

Dans ce chapitre, nous présentons les différents produits d'ozone restitués à partir des mesures IASI, tels que les colonnes totales (*NN*) et les profils verticaux (*Atmosphit*), qui seront utilisés lors d'un exercice de validation avec d'autres données corrélatives (c.f. chapitre 5). Une caractérisation de plusieurs cas particuliers d'inversion est présentée afin d'évaluer la sensibilité de l'instrument IASI à la basse troposphère. La dernière partie de ce chapitre fournit une analyse complète d'un cas particulier d'intrusion stratosphérique, en termes de fonction de lissage et de bilan d'erreurs.

Avant de présenter les résultats des inversions, nous rappelons les définitions de certains termes qui seront souvent employés :

- les données de niveau 1C (L1C) correspondent aux spectres apodisés. Ce sont ces spectres qui sont inversés;

- une fois le code d'inversion appliqué aux spectres, on obtient des données géophysiques telles que le profil de température, d'humidité ou encore de gaz traces qui sont appelées données de niveau 2 (L2).

4.1 Sélection des spectres non nuageux

Quel que soit le domaine spectral, le rayonnement mesuré au sommet de l'atmosphère peut être affecté par les nuages. En particulier, dans le domaine de l'IR thermique, les nuages absorbent le rayonnement émis par la surface de la Terre et réémettent un rayonnement à une température plus faible aussi bien vers la surface de la Terre que vers les plus hautes couches de l'atmosphère. Le signal mesuré au sommet de l'atmosphère est donc plus ou moins atténué en présence de nuages, selon leur type, altitude et épaisseur optique; de plus les signatures spectrales de certaines couches atmosphériques situées sous le nuage disparaissent. Les nuages n'étant pas pris en compte dans les algorithmes d'inversion *NN* et *Atmosphit*, les inversions d'ozone associées à des spectres affectés par des nuages ne sont pas fiables. Toutes les inversions présentées dans la suite (*NN* et *Atmosphit*) sont effectuées seulement pour des scènes sans nuages, identifiées à l'aide d'un filtre basé sur l'estimation des températures de brillance autour de 11 et 12 μm (BT11 et BT12) associées au spectres et sur leur comparaison avec la température de surface (T_s) fournie par les analyses ECMWF (Hadji-Lazaro et al., 2001; Clerbaux et al., 2009). Les spectres sont considérés comme "clairs" dès lors que les différences entre la température de surface et BT11 d'une part, et BT11 et BT12 d'autre part, sont inférieures à 15 K et 2K en valeur absolue respectivement.

Au cours de mes travaux de thèse, j'ai été amenée à appliquer ce filtre de nuage aux spectres IASI avant d'entreprendre les inversions avec l'algorithme *Atmosphit*.

4.2 Colonne totale d'ozone (*NN*)

4.2.1 Description du *NN*

L'algorithme d'inversion basé sur la technique des réseaux de neurones dont la structure générale est résumée sur la figure 4.2 se décompose en trois étapes (Turquety, 2003):

- La première étape consiste à isoler l'information mesurée (luminances mesurées par IASI - données de niveau 1C, température de surface et profil vertical de température) qui sera utilisée en entrée de l'algorithme d'inversion;
- Un module d'inversion basé sur les techniques des réseaux de neurones estime ensuite les concentrations de gaz traces en utilisant les données d'entrée; les sorties du *NN* sont constituées des colonnes totales et de trois colonnes partielles d'ozone intégrées entre la surface et 6 km, 12 km et 16 km.
- Une analyse complète des produits de sortie (concentrations de gaz traces) est ensuite réalisée afin de leur associer une estimation de l'erreur d'inversion et le noyau moyen caractérisant l'inversion.

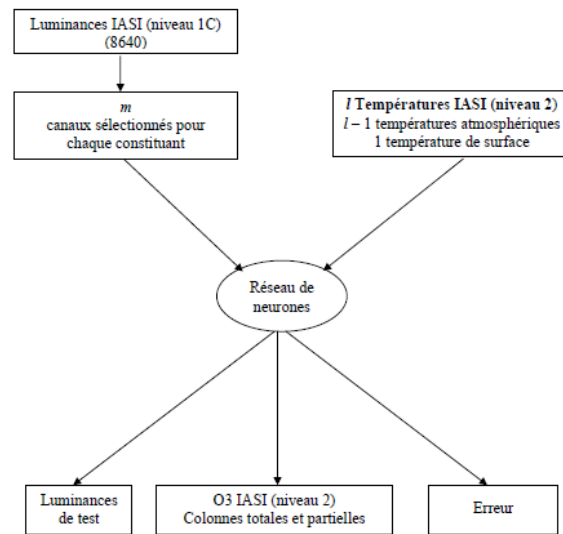


Fig. 4.2 - Schéma de l'algorithme opérationnel d'inversion de l'ozone développé pour la mission IASI. Les canaux sélectionnés pour l'ozone sont des canaux correspondant à de fortes signatures d'absorption de l'ozone mais minimisant les interférences avec les autres constituants absorbant dans la même région spectrale (tels que la vapeur d'eau). D'après Turquety (2003)

Les paramètres de l'architecture du *NN* sont résumés dans le tableau 4.1.

Les réseaux de neurones estiment des paramètres géophysiques à partir d'un ensemble d'apprentissage statistiquement représentatif de la situation réelle. Comme nous l'avons vu dans la section 3.3.2, la phase d'apprentissage du *NN* nécessite une base de données complète d'exemples connus et représentatifs du comportement du paramètre à estimer. Elle constitue l'information *a priori* de l'inversion. Dans l'algorithme d'inversion des concentrations d'ozone, la base de données a été réalisée à partir de spectres IASI simulés en couplant (Turquety, 2003):

- Le code de transfert radiatif raie par raie à haute résolution LBLRTM (Clough et al., 1995) ;
- Les profils verticaux atmosphériques issus du modèle de chimie-transport MOZART (Brasseur et al., 1998; Hauglustaine et al., 1998) connectés à la climatologie UGAMP (Li et Shine, Rapport Interne, 1995) au-dessus de la tropopause;
- Les températures de surface et atmosphériques fournies par les analyses ECMWF.

Les simulations ont été réalisées avec une émissivité de surface constante moyenne de 0.9813 estimée à partir des valeurs fournies par Wilber et al. (1999), dans des conditions non nuageuses et sans aérosol. D'autre part, le relief n'a pas été pris en compte (Turquety, 2003).

Tab. 4.1 - Description de l'architecture et des sorties du *NN* pour l'inversion de l'ozone. D'après Turquety (2003)

Entrée (<i>m</i> luminances + <i>l</i> températures)	<i>S</i> ₁	<i>S</i> ₂	Sorties (colonnes)	Symboles	Unités
173 <i>m</i> = 147 <i>l</i> = 25 + 1	16	16	Totale	<i>CT</i>	Unités Dobson (DU*)
			surface - 6 km	<i>C6</i>	DU
			surface - 12 km	<i>CI2</i>	DU
			surface - 16 km	<i>CI6</i>	DU

* DU = 2.69 10¹⁶ molécules.cm⁻².

Une évaluation complète des caractéristiques des inversions ainsi que de leur précision est nécessaire pour une utilisation optimale des mesures satellitaires par la communauté scientifique. Dans le cas du *NN*, l'estimation exacte des caractéristiques de l'inversion est cependant délicate. Il est en effet très difficile d'évaluer l'information *a priori* utilisée pour une inversion donnée et la manière dont celle-ci est traitée, au sens statistique de l'estimation optimale. La caractérisation classique linéaire (Rodgers, 2000) est donc difficilement applicable à l'algorithme *NN*. Cependant une comparaison directe avec d'autres données peut être entreprise avec une bonne fiabilité à condition que la base de données d'apprentissage soit représentative statistiquement de l'état réel. Le formalisme classique développé par Rodgers (2000) peut par contre être utilisé pour l'analyse des erreurs. Turquety et al. (2004) ont développé, parallèlement au *NN*, un module pour l'évaluation des incertitudes associées à chaque inversion. L'analyse des erreurs a montré que l'erreur d'inversion contribuant majoritairement est due à la sensibilité du système d'observation (instrument et algorithme) (Turquety et al., 2004). Par ailleurs une évaluation des performances des inversions peut être réalisée en utilisant une approche statistique (Turquety, 2003; Turquety et al., 2004). L'erreur globale des inversions est alors estimée à partir d'un jeu de données composé d'exemples connus et similaires aux exemples de la base d'apprentissage. Turquety et al. (2004) ont montré que l'erreur d'inversion est estimée à 1.5% pour une colonne totale mais peut atteindre jusqu'à 30% pour une colonne troposphérique. Au cours de cette thèse, seules les colonnes totales d'ozone restituées à partir de mesures IASI ont été analysées du fait de la moins bonne fiabilité des colonnes partielles.

Depuis le 4 juin 2007 (date de mise à disposition des données IASI de niveau 1C), les distributions globales de colonne totale d'ozone sont systématiquement restituées, en quasi temps réel, à partir des mesures IASI, en utilisant le *NN*. Les paramètres d'entrée du *NN* sont les spectres de luminances mesurés par IASI (données de niveau 1C) ainsi que la température de surface et le profil de température atmosphérique associés, fournis par les analyses du centre européen ECMWF, colocalisés en temps et en espace aux observations IASI. L'inversion de l'ozone est réalisée pour des spectres "sans nuages" et seulement pour certains canaux isolés entre 980 et 1080 cm⁻¹ (Turquety, 2003; Turquety et al., 2004) (c.f. figure 4.1).

Les températures de surface et les profils de température (données de niveau 2) restitués à partir des mesures IASI sont fournis de manière opérationnelle par EUMETSAT depuis septembre 2007. Cependant ces données ne sont pas encore très fiables et commencent tout juste à être validées. Nous avons donc décidé de continuer à utiliser les profils de température provenant des analyses ECMWF pour les inversions.

4.2.2 Résultats des inversions

Dans cette section, les résultats des inversions *NN* que j'avais à disposition au cours de mes travaux de thèse sont présentés. Un exemple de distributions globales de colonnes totales d'ozone restituées à partir des mesures de jour et de nuit IASI obtenues le 15 février 2008 est illustré sur la figure 4.3. Seules les mesures effectuées avec un angle de balayage inférieur à 32° par rapport au nadir sont considérées du fait que le *NN* n'a pas été entraîné pour des grands angles de balayage. De plus, il nous a semblé important de distinguer les mesures de jour des mesures de nuit qui n'ont pas la même sensibilité verticale. En effet, la température de surface (et surtout le contraste thermique) étant plus faible durant la nuit (c.f. section 3.2.2), la sensibilité sera plus faible la nuit. Cette distinction a été faite à partir de l'angle zénithal solaire (*sza* pour solar zenithal angle en anglais). Les mesures de jour, qui ont été étudiées au cours de ces travaux, sont définies pour un $sza < 83^\circ$ alors les mesures de nuit (non étudiées car nous intéressent moins) sont définies pour un $sza > 90^\circ$. Enfin, afin d'améliorer la lisibilité des distributions d'ozone, toutes les mesures disponibles sur une grille constante $1^\circ \times 1^\circ$ ont été moyennées pour chaque jour de mesure. Cette figure illustre la capacité de IASI à capturer la variabilité spatiale des colonnes totales d'ozone. Les valeurs maximales sont localisées au-dessus des moyennes et hautes latitudes alors que les valeurs minimales sont situées au niveau des tropiques.

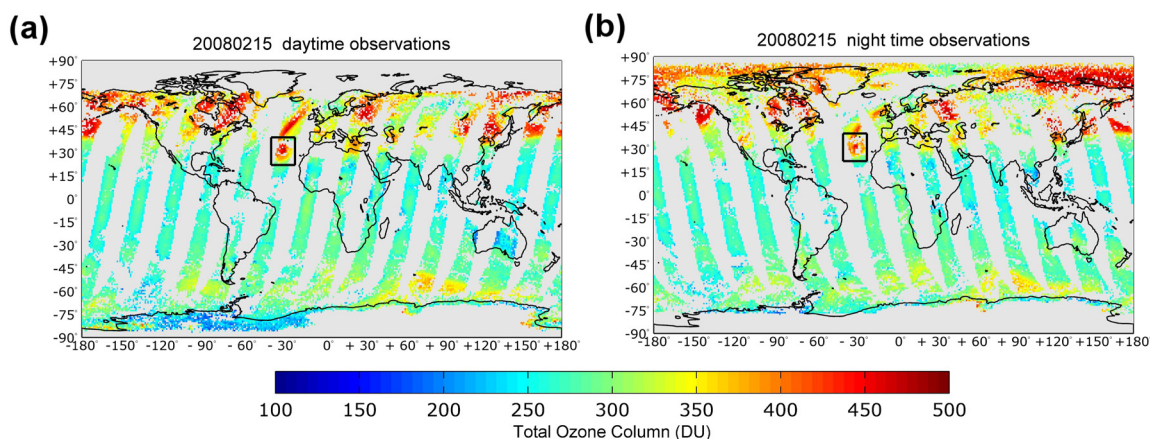


Fig. 4.3 - Distributions globales de colonnes totales d'ozone obtenues avec le *NN* pour des observations IASI "sans nuage" de jour (gauche) et de nuit (droite) le 15 février 2008. Les données sont moyennées sur une grille de $1^\circ \times 1^\circ$. Seules les mesures effectuées avec un angle de balayage inférieur à 32° par rapport au nadir sont considérées dans les restitutions.

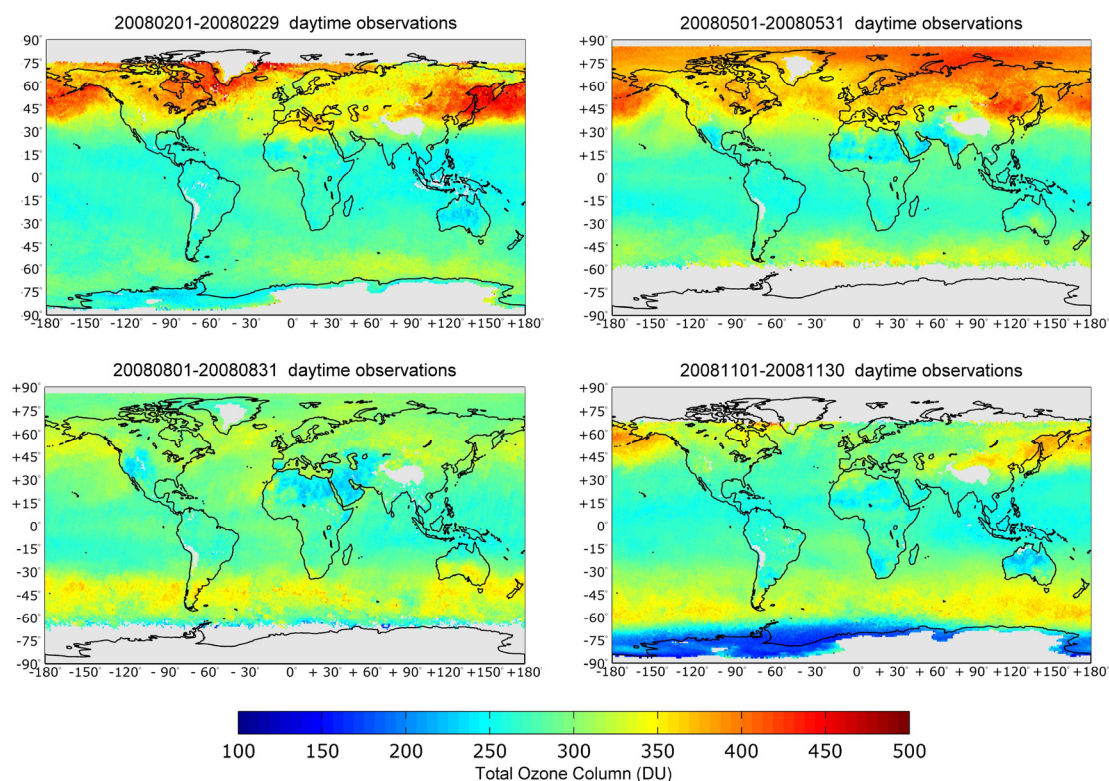


Fig. 4.4 - Distributions globales de colonnes totales d'ozone IASI (obtenues à partir de mesures de jour) moyennées sur une grille régulière $1^\circ \times 1^\circ$ et sur les mois de février, mai, août et novembre 2008 après application du filtre de nuage.

Afin d'étudier plus précisément la variabilité spatio-temporelle de l'ozone total, les colonnes totales d'ozone ont été moyennées pour les mois de février, mai, août et novembre de l'année 2008 (figure 4.4). Les valeurs maximales de colonne totale sont observées aux hautes latitudes pendant l'hiver et le printemps (hémisphère nord pour février et mai) ainsi que vers les moyennes latitudes, en particulier pendant l'hiver (hémisphère nord pour février et hémisphère sud pour août) et le printemps (hémisphère nord pour mai et hémisphère sud pour novembre). Les valeurs les plus faibles sont localisées dans les tropiques.

Environ 90% de l'ozone atmosphérique se situe dans la stratosphère. Les distributions de colonne totale sont donc plutôt attribuables à des processus photochimiques et dynamiques qui régissent dans cette région de l'atmosphère. Cependant l'importance de ces deux processus dans la variabilité de l'ozone dépend de l'altitude. Dans la haute stratosphère (au-dessus de 40 km), la durée de vie de l'ozone est courte, de quelques heures à la journée. L'ozone atteint alors son équilibre photochimique et les phénomènes de transport sont négligeables. En revanche, dans la basse stratosphère (entre la tropopause et environ 30 km d'altitude), la durée de vie photochimique de l'ozone peut aller de quelques jours à plusieurs mois; dans ce cas, les distributions de colonnes totales sont fortement contrôlées par les mouvements dynamiques des masses d'air stratosphérique. L'ozone peut alors être transporté jusqu'à des régions éloignées de sa zone de production, comme le

montrent les colonnes totales élevées d'ozone aux hautes latitudes pendant l'hiver. Le fait que la colonne totale tende à être maximale aux hautes latitudes et minimale aux tropiques résulte essentiellement du transport méridien qui est caractérisé par un mouvement ascendant au niveau des tropiques et par un mouvement de subsidence aux hautes altitudes, notamment pendant l'hiver (c.f. chapitre 2). Entre 30 et 40 km d'altitude, l'équilibre de l'ozone est plus complexe et résulte du couplage entre les processus photochimiques et dynamiques (Delmas, 2005).

Les fortes colonnes totales observées au niveau des moyennes latitudes nord peuvent être attribuées soit à la variabilité de la hauteur de la tropopause (qui est due à la succession de talwegs et de dorsales provoqués par l'ondulation du jet polaire) soit à une pollution photochimique anthropique au-dessus des régions industrialisées qui conduit à une augmentation des concentrations d'ozone dans la troposphère.

La figure 4.4 montre par ailleurs qu'il existe des différences entre les hémisphères. Dans l'hémisphère nord, la colonne totale d'ozone est maximale au pôle alors que dans l'hémisphère sud le maximum est plutôt situé dans la bande 40-60°S. Cette dissymétrie est due aux caractéristiques des vortex polaires. En effet, dans l'hémisphère sud, le vortex polaire, très froid et stable reste centré au-dessus du pôle et s'étend jusqu'à environ 65°S, les masses d'air riche en ozone restant confinées à l'extérieur. Dans l'hémisphère nord, du fait de la plus grande activité des ondes provenant de la troposphère liée aux nombreux contrastes entre les continents et les océans ainsi qu'aux régions montagneuses, le vortex est moins froid et moins stable. Statistiquement, le vortex hivernal est souvent décentré vers le Nord de l'Europe, ce qui permet aux masses d'air riche en ozone d'atteindre le pôle (Delmas, 2005).

Les faibles colonnes d'ozone observées au dessus du pôle sud sont dues à la destruction photochimique de l'ozone qui a lieu pendant le printemps austral.

4.3 Profils verticaux d'ozone (*Atmosphit*)

Les profils verticaux d'ozone sont restitués pour des régions spécifiques, en utilisant le code *Atmosphit*. Contrairement au *NN* pour lequel je disposais directement des sorties (colonnes totales d'ozone), j'ai mis en œuvre les inversions réalisées avec *Atmosphit*. Un travail important a consisté à construire une matrice de covariance *a priori* de l'ozone. Outre la restitution des profils d'ozone, ce code permet également une caractérisation complète des inversions en termes de sensibilité verticale et de sources d'erreur, ce qui est essentiel pour une utilisation optimale des données satellitaires.

4.3.1 Information *a priori*

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, l'inversion de profils de constituants atmosphériques à partir de mesures à distance est un problème mal posé. Elle doit donc être contrainte avec une information additionnelle représentant notre meilleure connaissance de l'état de l'atmosphère. Dans l'OEM, cette contrainte consiste en une information *a priori* composée d'un profil moyen de l'ozone et de la matrice de variance-covariance associée.

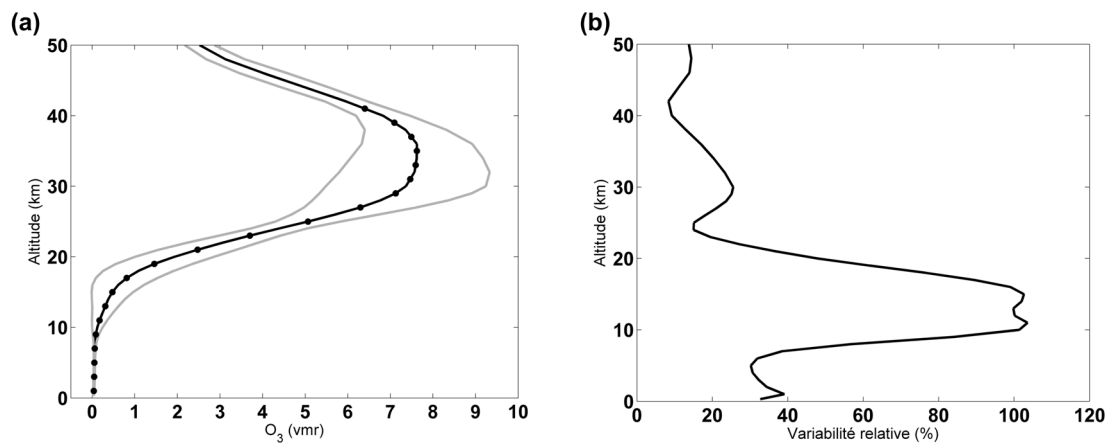


Fig. 4.5 - (a) Profil d'ozone *a priori* (noir) en rapport de mélange (vmr) construit à partir des mesures de sondes d'ozone pour la période 2004-2008 avec sa variabilité (gris) et les niveaux de restitutions (points noirs). (b) Variabilité *a priori* de l'ozone en pourcentage (racine carrée de la diagonale de la matrice de variance-covariance *a priori*).

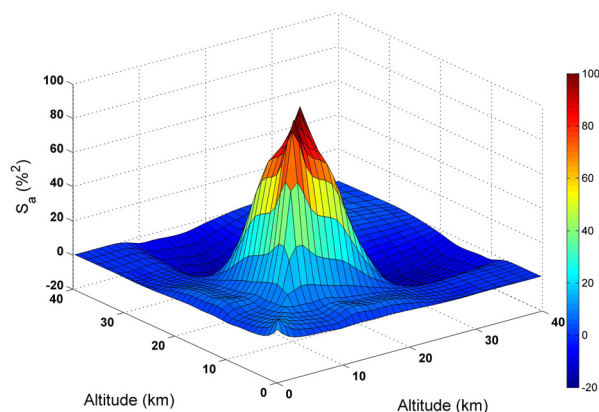


Fig. 4.6 - Matrice de variance-covariance *a priori* de l'ozone (en $\%^2$) construite à partir des mesures de sondes d'ozone pour la période 2004-2008.

Afin de construire un profil moyen d'ozone pour servir d'état *a priori* pour les inversions et une matrice de covariance réaliste, j'ai utilisé les mesures de sondes d'ozone disponibles sur tout le globe pour la période 2004-2008 (environ 5500 profils) et je les ai raccordées à la climatologie mensuelle UGAMP (Lie et Shine, Rapport Interne, 1995) au-dessus de 30-35 km. La matrice est donc représentative de la variabilité globale et annuelle de l'ozone.

Les écart-types représentant la variabilité de l'ozone à chaque altitude sont les racines carrées des variances (éléments diagonaux de la matrice de covariance). Le profil moyen de l'ozone et les écarts-types associés, mesurés en rapport de mélange (vmr), sont illustrés sur la figure 4.5a. La variabilité absolue en vmr est maximale entre 25 et 35 km alors que la variabilité relative, représentée sur la figure 4.5b, est plus importante au niveau de la haute troposphère et basse stratosphère entre 8 et 15 km. La variabilité est faible aux plus

hautes altitudes mais également près de la surface, où une valeur de l'ordre de 30% est observée. La matrice de variance-covariance *a priori* de l'ozone (illustrée sur la figure 4.6) est composée non seulement d'éléments diagonaux mais également d'éléments extra-diagonaux qui expriment la corrélation entre les concentrations aux différentes altitudes.

4.3.2 Paramètres d'inversion

La bande d'absorption de l'ozone la plus intense dans l'infrarouge thermique se trouve entre 980 et 1080 cm^{-1} . Une analyse détaillée du contenu en information a montré que la bande 980-1025 cm^{-1} n'apporte pas beaucoup d'information sur l'ozone. Dans ce contexte, les restitutions ont été effectuées dans la bande de l'ozone entre 1025 et 1075 cm^{-1} , ce qui permet de limiter le temps de calcul et d'éviter les interférences avec les raies de la vapeur d'eau. En effet, cette région spectrale englobe la majorité des raies d'absorption de l'ozone dans l'infrarouge thermique avec seulement quelques raies de H_2O et CO_2 . Les paramètres spectroscopiques ont été extraits à partir de la base de données HITRAN 2004 (Rothman et al. 2005). Le tableau 4.2 résume les différents paramètres utilisés pour l'inversion de l'ozone.

Les profils de pression et température atmosphérique (paramètres d'entrée au code d'inversion) ont été extraits des analyses ECMWF et ont été interpolés à la date et au lieu des mesures IASI à l'aide du logiciel Arletty (disponible sur le site d'Ether, ether.ipsl.jussieu.fr). Les concentrations d'ozone ont été inversées dans des couches de 2 km d'épaisseur, de la surface à 42 km. La température de surface, les colonnes partielles de H_2O et la colonne totale de CO_2 ont été simultanément ajustées.

4.3.3 Caractérisation des observations IASI d'ozone

Les fonctions de lissage, représentées par les lignes de la matrice **A** (c.f. section 3.3.1), décrivent la sensibilité du profil inversé au profil réel et au profil *a priori* selon Rodgers (1990, 2000) :

$$\hat{x} \approx x_a + A(x - x_a)$$

Ainsi la concentration inversée à une altitude donnée est une moyenne des concentrations réelles à toutes les altitudes, pondérée par les éléments de la fonction de lissage correspondante. Elles caractérisent la sensibilité verticale de l'instrument en fournissant des informations sur la sensibilité de la mesure aux différentes altitudes sondées et sur le nombre d'informations indépendantes qui peuvent être restituées.

Un exemple de fonctions de lissage calculées pour une mesure IASI effectuée le 23 juin 2008 (date choisie aléatoirement) au-dessus du continent européen lors de l'orbite du matin est illustré sur la figure 4.7. Chaque courbe représente une ligne de la matrice des fonctions de lissage pour une altitude donnée qui est représentée par les "points" (diagonale de la matrice). Par exemple, la courbe bleue dont l'amplitude est maximale correspond à la fonction de lissage à 11 km. Les fonctions de lissage obtenues présentent un pic très étalé dont le maximum correspond relativement bien au niveau d'inversion associé.

Tab. 4.2 - Tableau récapitulatif des données d'entrée à *Atmosphit*.

Domaine spectral	1025 - 1075 cm^{-1}
Base de données spectroscopique	HITRAN 2004
<i>A priori</i> (\mathbf{x}_a , \mathbf{S}_a)	Profils de sondes d'ozone (2004-2008) raccordés à la climatologie UGAMP
Profils de pression et de température	ECMWF
Bruit instrumental*	70 $\text{nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$
Paramètres ajustés	O_3 , température de surface, H_2O et CO_2

* Nous avons artificiellement augmenté le bruit d'un facteur trois pour permettre la convergence de la méthode d'estimation optimale.

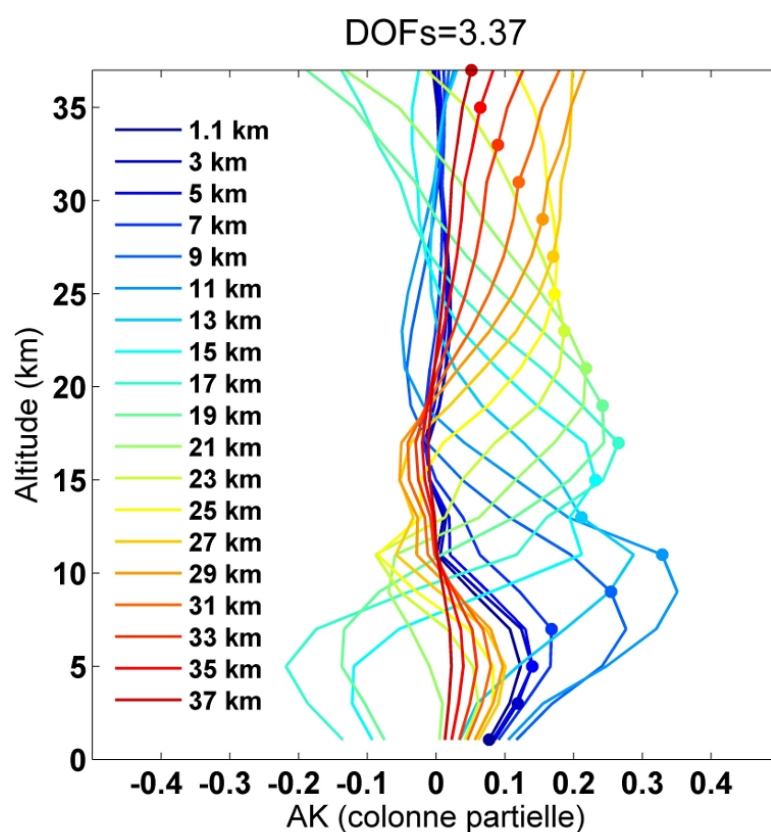


Fig. 4.7 - Fonctions de lissage obtenues pour l'inversion d'un profil d'ozone à partir des mesures IASI obtenues le 23 juin 2008. Les niveaux verticaux d'inversion, tous les 2 km, sont représentés par les "points".

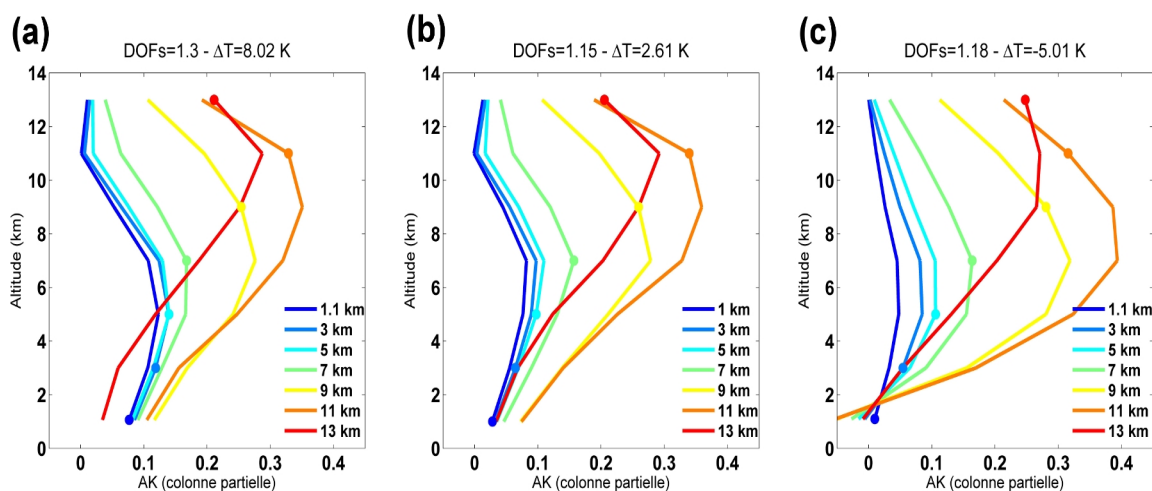


Fig. 4.8 - Fonctions de lissage obtenues pour l'inversion de profils d'ozone à partir des mesures IASI obtenues le 23 juin 2008, pour une scène de jour au-dessus du continent (a), de la Manche (b) et une scène de nuit au-dessus du continent (c). ΔT représente le contraste thermique. Les niveaux verticaux d'inversion sont représentés par les "points".

Cet exemple est caractérisé par un nombre de degré de liberté du signal (DOFS) de 3.4 environ, indiquant que trois colonnes indépendantes peuvent être restituées. La figure met en évidence deux pics principaux, autour de 6-10 km d'altitude dans la troposphère libre et autour de 15-20 km d'altitude dans la basse stratosphère. Des pics positifs dont le maximum ne correspond pas au niveau inversé ainsi que de forts pics négatifs sont observés dans la troposphère.

Afin de mieux observer les caractéristiques des fonctions de lissage dans la troposphère et dans la basse stratosphère, un zoom des premiers niveaux d'inversion est présenté sur la figure 4.8a. La figure montre que les fortes sensibilités négatives observées sur la figure 4.7 disparaissent. En fait ces sensibilités observées correspondent à des niveaux d'inversion situés dans la stratosphère au-dessus de 15 km. Quel que soit le niveau d'inversion considéré, les fonctions obtenues sont très étalées et présentent un maximum entre 6 et 11 km. La résolution verticale, correspondant à la largeur à mi-hauteur, est d'environ 6-8 km. L'inversion d'un profil vertical aura donc une incertitude relativement importante.

Sensibilité des observations IASI dans la basse troposphère

Nous avons vu dans le chapitre 3 que le contraste thermique, noté ΔT dans la suite, présente une variabilité spatiale, saisonnière et diurne significative. D'importants contrastes thermiques apparaissent fréquemment au-dessus des continents (c.f. chapitre 3, Prigent et al., 2003) et peuvent atteindre 10 K et plus, même dans les régions non désertiques des moyennes latitudes (Duda et Minnis, 2000). La sensibilité des profils d'ozone inversés au profil réel devrait également varier, notamment à la surface (Prigent et al., 2003). Cet effet peut être mis en évidence en analysant les fonctions de lissage.

Des observations obtenues par l'instrument IASI, au-dessus de l'Europe ont été exploitées afin de démontrer la façon dont les fonctions de lissage sont affectées par le contraste thermique. Pour cette analyse, trois scènes ont été comparées afin de comprendre d'une part, les effets diurnes au-dessus des continents et d'autre part les différences entre les continents et les océans. La première scène est localisée à l'ouest de la France dans la Manche et a été observée le 23 Juin 2008 lors de l'orbite du matin (même scène que celle de la figure 4.7). Les deux autres scènes sont situées dans le nord-ouest de la France, à la même latitude, et ont été observées le 23 juin 2008 lors d'une orbite du matin et du soir, respectivement.

Les fonctions de lissage illustrées sur la figure 4.8 sont montrées pour 7 niveaux verticaux d'inversion espacés de 2 km, allant de 1 km à 13 km. Pour le cas de jour au-dessus du continent (a), les fonctions de lissage proches de la surface indiquent une sensibilité à l'ozone plus importante dans la basse troposphère que pour le cas au-dessus de la Manche (b). Ce résultat est illustré avec les 2 courbes bleues correspondant aux fonctions de lissage à 1 km et à 3 km. Toujours pour cette même scène, la sensibilité à l'ozone de surface est pratiquement identique que l'on soit à la surface ou autour de 3 km. Pour le cas au-dessus de l'océan ($\Delta T = 2.61$ K), la fonction de lissage obtenue à la surface pique aux environs de 7 km et décroît brutalement près de la surface. Donc dans cette situation, les concentrations d'ozone restituées à la surface reflètent essentiellement la variabilité de l'ozone dans la moyenne troposphère.

Au contraire, le cas de jour au-dessus du continent montre qu'une augmentation du contraste thermique ($\Delta T = 8.02$ K) conduit à une sensibilité plus importante aux concentrations d'ozone de la basse troposphère. On voit, par exemple, que la sensibilité de l'ozone - inversé au niveau de la surface - à des perturbations à la surface augmente de 0.02 (cas (b)) à 0.08 (cas (a)) environ. Inversement, pour des valeurs négatives de ΔT (figure 4.8c), correspondant généralement à des mesures de nuit, l'inversion devient moins sensible à la surface. Une telle situation peut arriver dans le cas de mesures de nuit au-dessus des continents, pour lesquelles les profils de température dans la couche limite présentent une inversion.

Dans les trois cas, le nombre de degré de liberté dans la troposphère varie entre 1 et 1.3, ce qui signifie, qu'une seule colonne troposphérique peut être restituée.

De manière générale, quel que soit l'instrument IR en visée en nadir, la sensibilité de l'inversion est plus importante pour des mesures de jour au-dessus des continents, particulièrement dans les tropiques et les moyennes latitudes qui sont caractérisés par une variation diurne de la température de surface (Deeter et al., 2007). Les observations de nuit au-dessus des continents montrent typiquement une faible sensibilité aux constituants de la basse troposphère.

4.3.4 Bilan d'erreur global

Des profils d'ozone observés par des sondes à différentes stations dispersées sur tout le globe ont été utilisés dans le but de valider les inversions de l'ozone troposphérique (c.f. chapitre 5). A cette occasion, un jeu de données composé de tous les profils inversés autour de stations de sonde pendant la période juin 2007 – août 2008 a été utilisé pour quantifier l'erreur globale (incluant l'erreur de lissage) dans les inversions.

Les résultats ont montré que l'erreur d'inversion est estimée à 25%, 15%, 11.5% et 3.5% pour les colonnes intégrées [surface-6 km], [surface-12 km], [surface-16 km] et [surface-42 km]. Des erreurs variant de 20 à 40% ont été estimées pour les profils verticaux dans la troposphère.

4.4 Caractérisation d'un cas particulier : une intrusion stratosphérique

4.4.1 Inversion de l'ozone avec le *NN* et *Atmosphit*

Si l'on reprend l'exemple de distribution globale de colonnes totales d'ozone restituées à partir des mesures de jour IASI obtenues le 15 février 2008, illustré sur la figure 4.3, un événement remarquable localisé dans l'Atlantique Est autour de [35°N, 30°E] est observé par l'instrument. Due à un système de dépression situé aux alentours des Iles Canaries (figure 4.9), la hauteur de la tropopause diminue massivement, ce qui résulte en une augmentation des valeurs des colonnes totales d'ozone.

Un exemple d'ajustement spectral avec le profil vertical d'ozone associé pour un cas situé au dessus de l'Atlantique Est (zone encadrée en noir sur la figure 4.3), présentant une forte valeur de colonne totale d'ozone est illustré sur la figure 4.10. Les résultats montrent que l'ajustement de la bande d'ozone (figure 4.10a) est très satisfaisant, avec un résidu de l'ordre de 27 nW/(cm² sr cm⁻¹), valeur très faible et proche du bruit radiométrique IASI qui a été estimé à 20 nW/(cm² sr cm⁻¹) dans la région spectrale d'absorption de l'ozone (Clerbaux et al., 2009, c.f. figure 3.19).

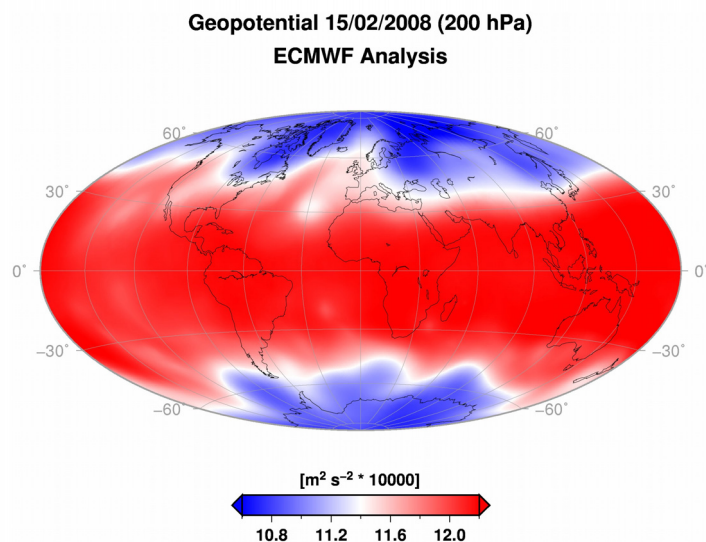


Fig. 4.9 - (a) Distribution globale de la hauteur du géopotentiel à 200 hPa obtenue à partir des analyses opérationnelles ECMWF le 15 février 2008, montrant un système de basse pression au-dessus des Iles Canaries.

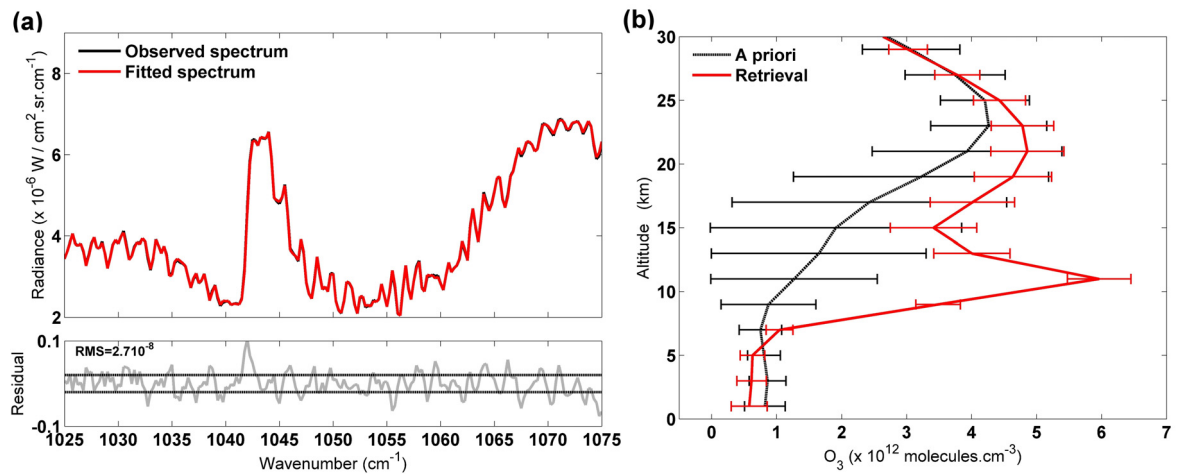


Fig. 4.10 - (a) Ajustement spectral et résidu pour une observation IASI effectuée le 15 février 2008 dans l'Atlantique Est. (b) Profil d'ozone restitué (rouge) et *a priori* (noir).

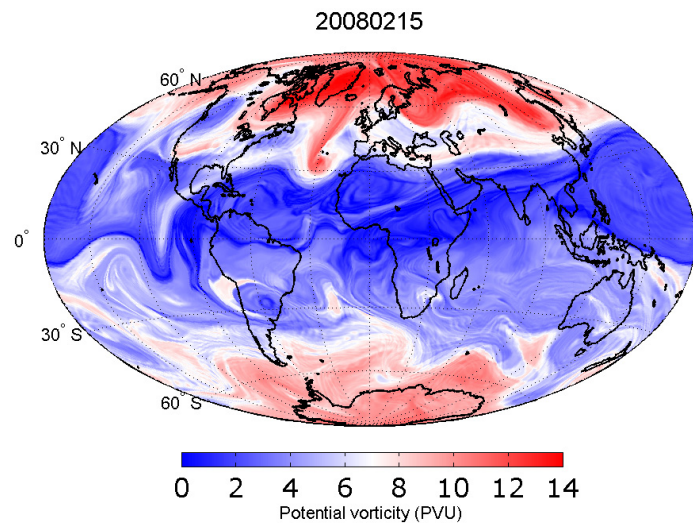


Fig. 4.11 - Distribution globale de la vorticité potentielle à 380 K obtenue à partir du modèle MIMOSA (Modélisation Isentrope du transport Mésos-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection) le 15 février 2008, montrant un filament de masse d'air polaire riche en ozone et advectée vers une région subtropicale beaucoup moins riche en ozone (au-dessus des Iles Canaries). Dans l'hémisphère sud, la vorticité potentielle est représentée en valeur absolue.

Le profil vertical (figure 4.10b) est caractérisé par un second maximum d'ozone dans la troposphère vers 11 km d'altitude. Ce résultat est en accord avec le système de basse pression observé sur la figure 4.9, qui est responsable du transport des masses d'air stratosphérique (enrichi en ozone) dans la région de la tropopause. La vorticité potentielle qui est un traceur des masses d'air stratosphérique transportées dans la troposphère (Appenzeller et al., 1997) a également été examinée et corrobore notre interprétation d'une intrusion stratosphérique, comme le montre la figure 4.11.

4.4.2 Fonctions de lissage et contenu en information

La figure 4.12a illustre les fonctions de lissage pour l'observation du 15 février 2008. Les fonctions de lissage sont données pour des colonnes partielles de 6 km d'épaisseur, de la surface à 24 km. La sensibilité de IASI au profil d'ozone est maximale dans la troposphère libre (autour de 6 km) mais ne permet pas de dériver plus de 1.2 information indépendante dans la troposphère. Cette mesure correspondant à une température de surface de 291.4 K est caractérisée par une valeur totale de DOFS de 3.5. La forme des fonctions de lissage indique que 2 colonnes indépendantes dans la haute troposphère et basse stratosphère peuvent être restituées indépendamment de la colonne troposphérique.

4.4.3 Analyse d'erreur

Les contributions à l'erreur totale associée à la concentration (colonne ou profil) restituée proviennent de différents facteurs : erreurs liées à la géométrie du sondage (erreur de lissage) et à l'instrument (erreur de mesure), incertitudes sur le profil de la température, sur l'émissivité, et erreurs sur la concentration des autres espèces. Ces contributions sont calculées en suivant le formalisme exposé dans la section 3.3.1. L'erreur de mesure est estimée en utilisant une matrice de covariance de la mesure diagonale avec tous les éléments diagonaux identiques et égaux au bruit IASI qui a été estimé à $20 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \cdot \text{sr} \cdot \text{cm}^{-1})$ (Clerbaux et al., 2009). Les spectres atmosphériques dépendent fortement de la température; ainsi une incertitude sur le profil de température utilisé lors de l'inversion entraîne des erreurs sur l'inversion. Il en est de même pour les concentrations de constituants atmosphériques interférant dans la bande d'absorption de l'ozone (H_2O , CO_2) qui sont également ajustés lors de l'inversion.

Le bilan d'erreur associé (figure 4.12b) montre que l'erreur de lissage est la source principale d'erreurs à toutes les altitudes avec un maximum atteignant 40% entre 8 et 15 km. L'erreur de mesure et l'incertitude sur le profil de température contribuent dans une certaine mesure; le maximum ne dépasse jamais 10%. Les erreurs sont maximales entre 10 et 15 km, ce qui est en grande partie lié à l'information *a priori*. En effet, à ces altitudes, la variabilité *a priori* est importante (courbe en gris), ce qui permet d'obtenir une erreur d'inversion faible en comparaison à la variabilité *a priori*, mais les valeurs d'erreur restent élevées (par rapport à la troposphère libre par exemple). Par ailleurs la quantité d'ozone dans la haute troposphère et dans la basse stratosphère (UTLS pour upper troposphere lower stratosphere en anglais) est relativement faible. Ceci s'explique également par le fait que l'altitude de la tropopause varie et que le profil *a priori* n'est par conséquent pas représentatif de toutes les situations (puisque c'est une moyenne).

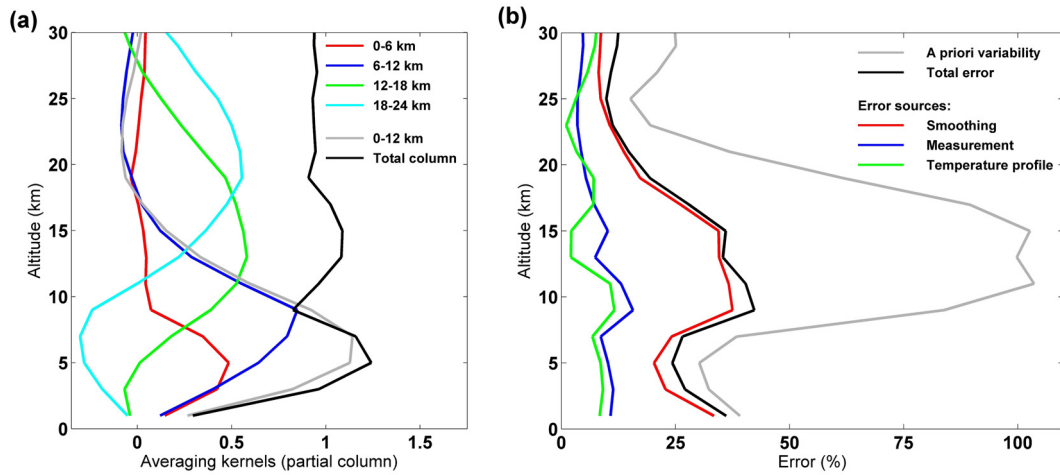


Fig. 4.12 - (a) Fonctions de lissage pour les colonnes partielles [surface-6], [6-12], [12-18] et [18-24] km caractérisant l'observation présentée sur la figure 4.10. La fonction de lissage associée à la colonne troposphérique [surface-12] km est également présentée. (b) Bilan d'erreur associé (représentation de la diagonale des matrices d'erreur). Profils des erreurs de lissage, de mesures et incertitudes sur le profil de température comparés au profil de variabilité *a priori* de l'ozone.

Rappelons toutefois que les erreurs sont des matrices avec des corrélations (c.f. section 3.3.1), ce que la représentation de la diagonale ne permet pas d'appréhender (c.f. figure 4.12b). Par contre, les fonctions de lissage sont l'outil qui permet d'appréhender les corrélations sur la verticale et l'erreur de lissage (la plus importante) est directement reliée aux fonctions de lissage représentées sur la figure 4.12a.

4.5 Résumé et conclusions

Ce chapitre a permis de décrire les différents algorithmes d'inversion utilisés au cours de cette thèse ainsi que les produits d'ozone pouvant être dérivés. Le *NN*, basé sur les techniques des réseaux de neurones est un algorithme opérationnel permettant de restituer des colonnes totales d'ozone alors que le code *Atmosphit*, basé sur l'OEM, est utilisé en mode recherche afin, d'une part, de restituer des profils verticaux d'ozone et, d'autre part, de caractériser les inversions.

La caractérisation des inversions qui a été effectuée sur un exemple particulier, a permis d'avoir une première estimation du potentiel de IASI à observer l'ozone. Bien que les spectres aient une sensibilité maximale dans la troposphère libre, leur sensibilité à l'ozone reste importante dans la stratosphère en raison de sa forte concentration dans cette partie de l'atmosphère. Cette sensibilité à l'ozone stratosphérique montre que IASI est capable d'observer les quantités d'ozone total. Les spectres présentent un contenu en information d'environ 3 éléments d'information indépendants et une résolution verticale de l'ordre de 6-8 km. Il n'est donc pas très facile d'inverser un profil vertical d'ozone, sauf si l'on dérive des colonnes partielles d'une hauteur équivalente à la résolution verticale de

l'instrument. Une étude plus détaillée sur la sensibilité de IASI à la basse troposphère réalisée sur trois exemples particuliers a mis en évidence l'importance de la sensibilité de IASI à la basse troposphère par des mesures de jour au-dessus des continents.

Une analyse de l'erreur totale a été réalisée sur un ensemble de profils inversés IASI pour la période juin 2007-août 2008 et a montré que l'erreur d'inversion est estimée à 25%, 15%, 11.5% et 3.5% pour les colonnes intégrées [surface-6 km], [surface-12 km], [surface-16 km] et [surface-42 km]. Des erreurs variant de 20 à 40% ont été estimées pour les profils verticaux dans la troposphère.

La dernière partie de ce chapitre a donné un aperçu de la capacité de IASI pour l'observation de l'ozone, notamment lors d'échanges verticaux troposphère-stratosphère.

Le chapitre suivant est consacré à la validation des produits d'ozone, dans un premier temps des colonnes totales et, dans un second temps des colonnes partielles d'ozone dans la troposphère.

Chapitre 5

Validation des inversions IASI avec des mesures corrélatives

Lorsque l'on dispose de mesures satellitaires, une première étape consiste en l'inversion des données afin de restituer la variable géophysique voulue, dans notre cas les concentrations d'ozone. Cette étape, décrite dans le chapitre précédent, a montré qu'il est possible de restituer, à partir des mesures IASI, d'une part l'ozone total mais également l'ozone troposphérique. Une deuxième phase nécessaire pour toute utilisation des données est la validation des inversions, de l'ozone total dans un premier temps, qui est le produit le plus facilement restituable (et le plus précis), puis des profils ou des colonnes partielles.

Afin de valider les colonnes totales et partielles d'ozone restituées à partir des observations IASI, j'ai utilisé différentes données corrélatives d'autres instruments :

- les mesures de colonne totale d'ozone fournies par des instruments UV-vis tels que l'instrument GOME-2 / MetOp-A et des instruments au sol du réseau Dobson-Brewer;
- les mesures de colonne totale d'ozone fournies par des instruments IR tels que les instruments AIRS / Aqua et TES / Aura;
- les profils d'ozone mesurés par des ballons sonde à différentes stations, dont l'intégration permet de calculer les colonnes partielles [surface-6 km] et [surface-12 km] dans la troposphère.

Dans ce chapitre, nous présentons la comparaison des inversions IASI aux différentes mesures corrélatives citées ci-dessus. Les colonnes totales IASI inversées sont, dans un premier temps, comparées aux colonnes totales fournies, d'une part, par l'instrument GOME-2 également embarqué sur le satellite MetOp et mesurant dans l'UV-vis, et d'autre part, par les instruments du réseau Brewer et Dobson (qui mesurent également dans l'UV-vis). Les colonnes totales d'ozone sont ensuite comparées aux observations fournies par les instruments TES et AIRS mesurant dans l'IR. Puis les mesures de sondes sont utilisées pour évaluer les inversions des colonnes partielles dans la troposphère. Enfin nous présentons une comparaison préliminaire des inversions IASI avec les profils d'ozone simulés par le modèle CHIMERE dans la troposphère en Europe.

5.1 Colonnes totales d'ozone

Dans cette section, les sorties de l'algorithme *NN* sont utilisées pour la validation de l'ozone total IASI.

5.1.1 Comparaison avec les mesures UV-visible

Mesures satellitaires GOME-2

L'instrument GOME-2 également à bord du satellite MetOp-A est essentiellement dédié à la surveillance des quantités, de la distribution et de la variabilité de l'ozone, comme son nom l'indique, ainsi que d'autres espèces cibles telles que le NO₂ et le SO₂. GOME-2 poursuit l'observation débutée par l'instrument GOME embarqué sur la plateforme européenne ERS-2 (European Remote Sensing) lancé en avril 1995. Contrairement à son voisin IASI, GOME-2 est un spectromètre mesurant la luminance rétrodiffusée par l'atmosphère et par la surface de la Terre dans la région spectrale de l'UV-vis s'étendant de 240 à 790 nm. Il utilise une géométrie de visée au nadir avec une fauchée d'environ 1920 km de large, permettant de fournir une couverture journalière globale à l'équateur. Son champ de vue varie de 5 km x 40 km à 80 km x 40 km (par défaut).

Les restitutions des colonnes totales d'ozone à partir des mesures GOME-2 ont été effectuées en utilisant l'algorithme opérationnel de traitement des données GOME (GOME Data Processor, GPD). Cet algorithme repose sur une méthode classique d'ajustement DOAS-AMF (Van Roozendaal et al., 2006). Les données GOME-2 de niveau 2 sont fournies par le DLR (German Aerospace Center) et sont disponibles en quasi temps réel depuis fin mars 2007, via le système de dissémination EUMETCast. La comparaison des colonnes totales GOME-2/MetOp avec des mesures au sol et satellitaires a montré l'excellente qualité des données (Balis et al., rapport de validation, 2008, peut être obtenu sur le site web : <http://wdc.dlr.de/sensors/gome2/>).

Les nuages étant pris en compte dans le code de transfert radiatif du DLR, toutes les mesures GOME-2 sont considérées. Les distributions de colonnes totales IASI et GOME-2 ont été moyennées sur une grille constante de 1° x 1° et comparées pour l'année 2008. Il faut noter que les instruments UV-vis ne fournissent que des observations de jour, donc seules les mesures de jour IASI ont été comparées.

Un exemple de distribution globale de colonnes totales d'ozone obtenue le 15 février 2008 à partir de mesures GOME-2 est illustré sur la figure 5.1. La figure montre que l'intrusion stratosphérique observée par IASI (c.f. figure 4.3) est également observée par GOME-2.

La figure 5.2 présente les distributions globales saisonnières des colonnes totales d'ozone obtenues à partir des restitutions IASI *NN* et GOME-2. Globalement les deux instruments observent des structures similaires, pour les colonnes totales d'ozone, qui sont fonction de la latitude. Comme attendu, les valeurs maximales sont observées aux hautes latitudes alors que les valeurs minimales sont situées dans les tropiques (sauf pour les saisons auxquelles se forme le trou de la couche d'ozone).

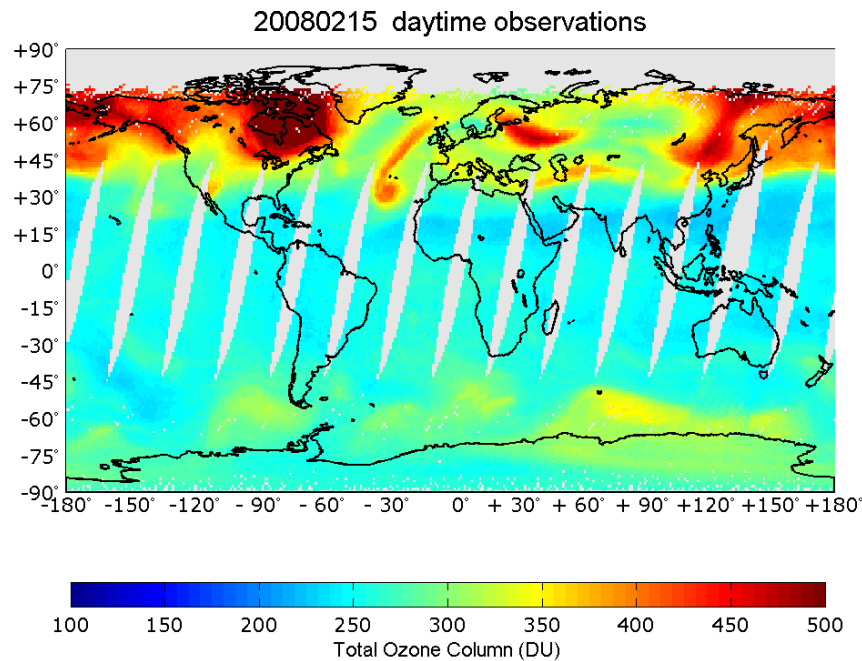


Fig. 5.1 - Distribution globale des colonnes totales d'ozone obtenue avec GOME-2 le 15 février 2008. Les données sont moyennées sur une grille de $1^\circ \times 1^\circ$.

Une comparaison statistique directe a également été effectuée entre les colonnes totales d'ozone IASI et GOME-2 pour chaque saison, à l'échelle globale et pour cinq bandes de latitude (tableau 5.1 et figure 5.3). A l'échelle globale, l'accord entre les deux distributions est très bon, avec des coefficients de corrélation variant de 0.92 à 0.98 et un écart-type de 9.7 à 28.2 Unités Dobson (DU) selon la saison. La comparaison met également en évidence une surestimation des colonnes totales IASI par rapport à GOME-2 (biais positif variant de 4.9 DU à 13 DU). En moyenne sur l'année, le biais est d'environ 9 DU ($\sim 3\%$) ce qui est du même ordre de grandeur que celui trouvé par Osterman et al. (2008) pour les colonnes totales d'ozone TES en comparaison aux données OMI (Ozone Monitoring Instrument) et par Turquety et al. (2002) lors de la comparaison entre les données IMG et TOMS.

L'analyse détaillée entreprise pour différentes bandes de latitude montre que le biais peut être négatif, notamment aux hautes latitudes nord pendant l'hiver où l'on trouve le biais et l'écart-type les plus importants (-44.0 DU et 36.8 DU respectivement) et le coefficient de corrélation le plus faible (0.39), quelle que soit la saison. Les moyennes latitudes présentent les coefficients de corrélation les plus importants, excepté pour les moyennes latitudes nord en juillet-août-septembre et les moyennes latitudes sud en octobre-novembre-décembre.

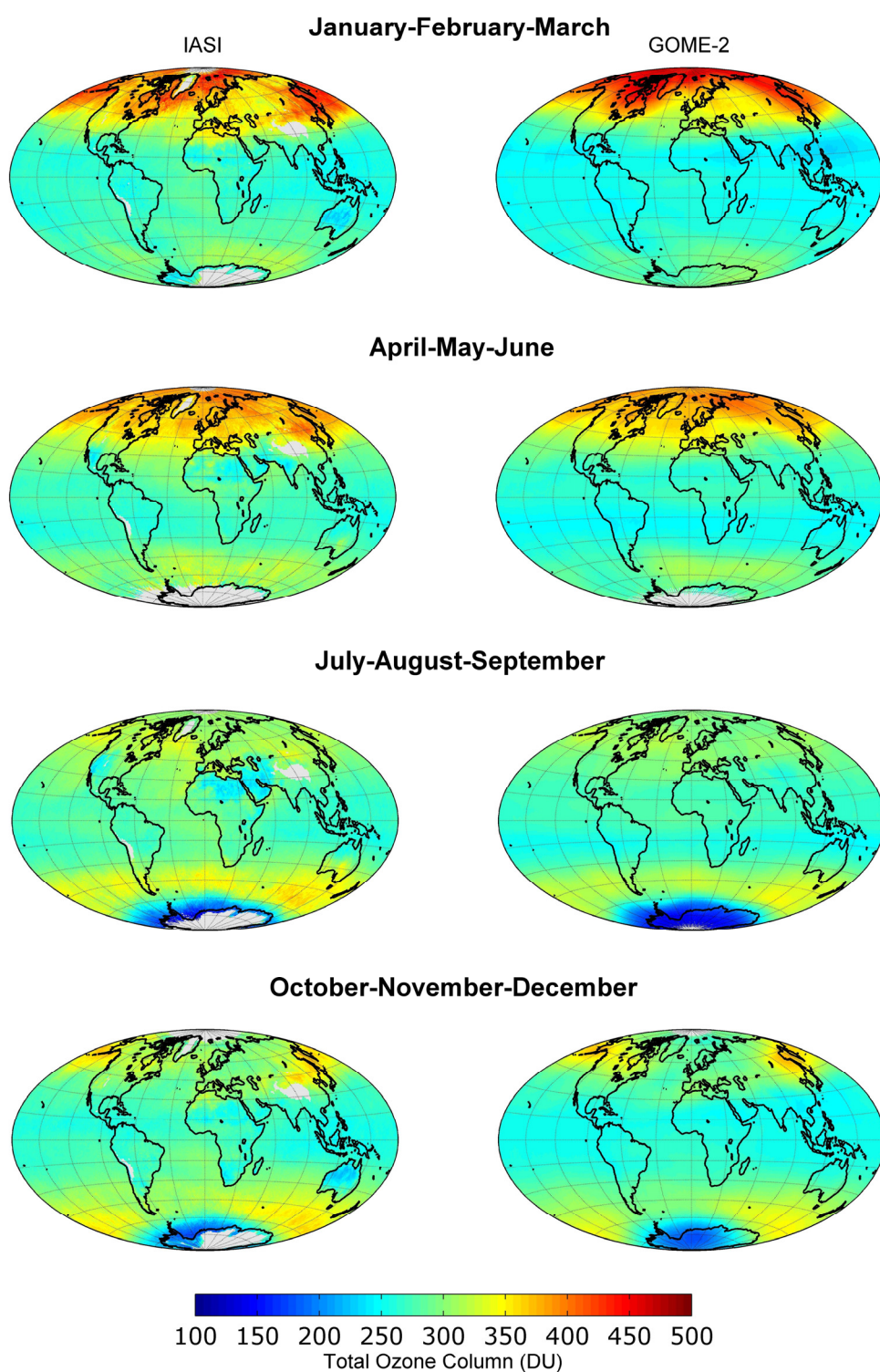


Fig. 5.2 - Distributions globales moyennées sur des périodes de trois mois ($1^\circ \times 1^\circ$): Colonnes totales d'ozone IASI (gauche) comparées aux colonnes totales d'ozone GOME-2 (droite) pour des mesures de jour. D'après Boynard et al. (2009)

Tab. 5.1 - Corrélations et biais entre les colonnes totales obtenues à partir des mesures IASI et GOME-2 pour chaque saison. L'écart-type est également présenté. Le biais et l'écart-type sont donnés en unité Dobson (DU).

	Jan-Fev-Mar		Avr-Mai-Jui		Juil-Aoû-Sep		Oct-Nov-Dec	
	Coef corr	Biais (1 σ)	Coef corr	Biais (1 σ)	Coef corr	Biais (1 σ)	Coef corr	Biais (1 σ)
Toutes latitudes	0.92	4.9 (28.2)	0.98	13.0 (9.7)	0.95	10.3 (11.6)	0.92	8.6 (13.3)
60°N–90°N	0.39	-44.0 (36.8)	0.78	9.2 (8.5)	0.85	9.9 (4.8)	0.74	9.8 (13.9)
30°N–60°N	0.90	13.0 (19.6)	0.92	16.3 (11.3)	0.77	9.1 (12.9)	0.90	9.7 (12.4)
30°S–30°N	0.72	17.3 (9.9)	0.73	12.2 (9.3)	0.49	10.5 (12.1)	0.69	11.5 (9.8)
60°S–30°S	0.93	15.6 (4.9)	0.49	14.3 (5.4)	0.94	13.0 (6.7)	0.95	10.2 (6.5)
90°S–60°S	0.57	-1.0 (17.8)	0.69	13.8 (15.4)	0.92	7.8 (19.8)	0.91	-5.8 (20.6)

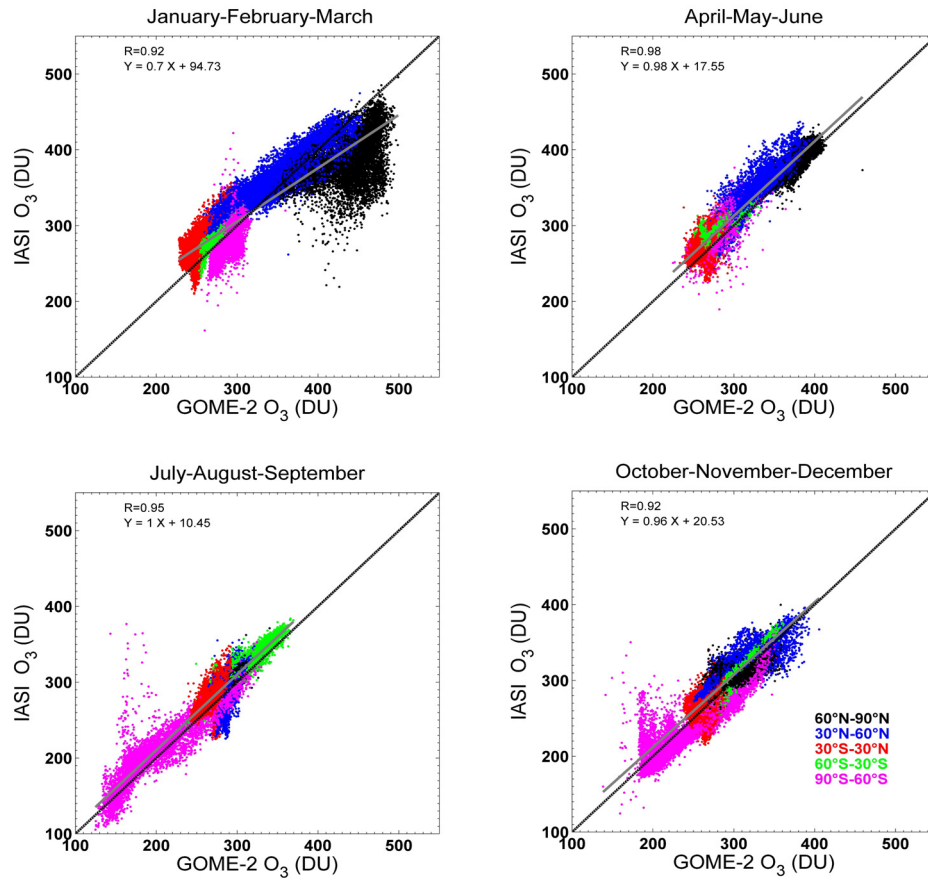


Fig. 5.3 - Corrélations entre les colonnes totales d'ozone IASI et GOME-2 moyennées sur des périodes de trois mois de l'année 2008. Les données sont moyennées sur une grille constante de 1° x 1°. Les couleurs correspondent à différentes bandes de latitude comme indiqué sur la figure en bas à droite. D'après Boynard et al. (2009)

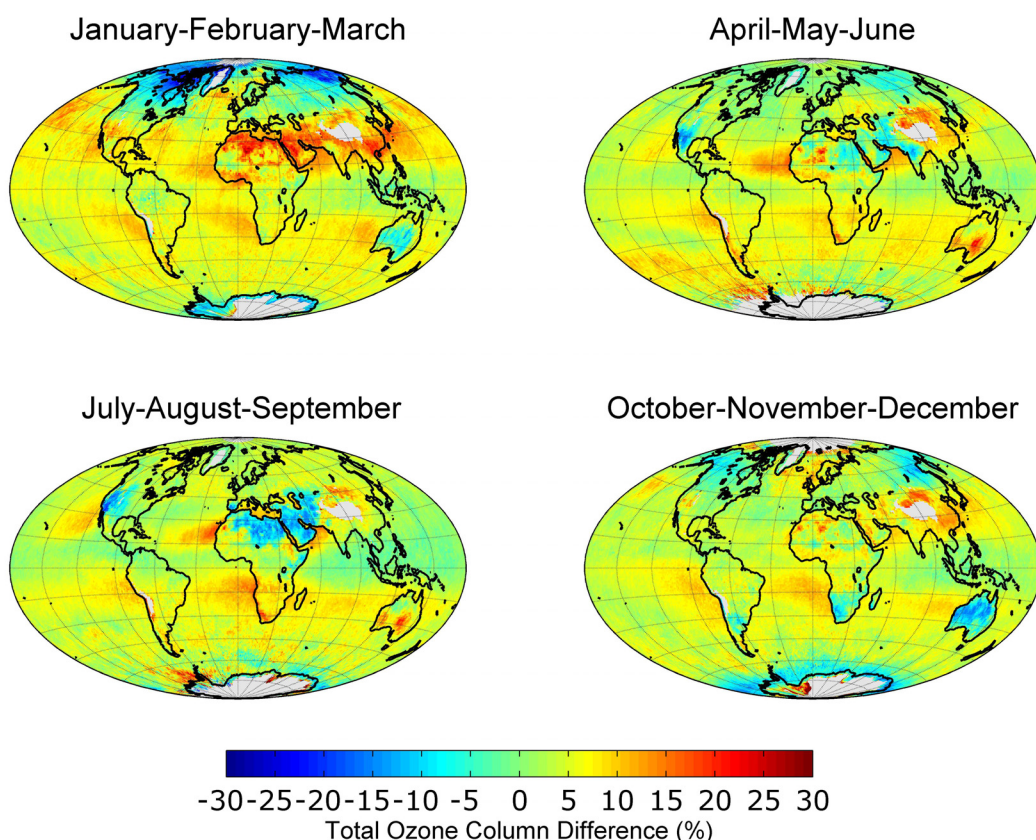


Fig. 5.4 - Différences relatives entre les colonnes totales d'ozone IASI et GOME-2 moyennées sur des périodes de trois mois de l'année 2008 et pour des mesures de jour ($1^\circ \times 1^\circ$). Les différences relatives sont calculées selon: $100 \times (\text{IASI} - \text{GOME-2}) / \text{GOME-2}$. D'après Boynard et al. (2009)

Afin de localiser précisément les régions pour lesquelles les différences les plus importantes sont observées, les différences relatives entre les colonnes totales IASI et GOME-2 ont été calculées pour chaque saison et sont représentées sur la figure 5.4. Globalement les différences n'excèdent pas 15% et des dépendances latitudinales apparaissent, en particulier dans l'hémisphère sud entre 30°S et 60°S .

Ces différences sont en partie dues à la spectroscopie, notamment aux banques de données spectroscopiques qui diffèrent selon le domaine spectral. En effet, il existe à l'heure actuelle de fortes incertitudes concernant la cohérence des sections efficaces dans l'UV et des intensités des raies dans l'IR pour les molécules clés telles que l'ozone. Des travaux ont d'ailleurs montré que les sections efficaces publiées dans les différents domaines spectraux sont en désaccord de 4-5% (Picquet-Varrault et al., 2005; Gratien, 2008).

Les différences observées entre les 2 instruments sont également partiellement attribuées aux différents modes d'observation. Tout d'abord, les instruments ont différents pixels au sol (12 km pour IASI (circulaire), 40×80 km pour GOME-2). Ils sont donc sujets à des contaminations nuageuses différentes. D'autre part, la géométrie d'observation est différente, ce qui implique que différentes masses d'air sont sondées. Enfin les deux instruments sont caractérisés par différentes fonctions de poids dans la stratosphère;

GOME-2 a une sensibilité maximale dans la stratosphère alors que IASI présente une sensibilité maximale dans la troposphère libre. D'importantes différences sont observées au-dessus de régions caractérisées par des émissivités extrêmes, telles que les déserts (e.g. Sahara, Moyen-Orient) qui ne sont pas bien représentées par l'algorithme d'inversion basé sur le *NN*. Les biais observés sont également attribués aux différentes méthodes d'inversion utilisées ainsi qu'à l'information *a priori* utilisée, qui est différente selon l'algorithme d'inversion. Il faut aussi noter que le traitement des aérosols, qui absorbent dans la même région spectrale que l'ozone, n'a pas encore été effectué lors de nos inversions de concentration des données IASI. Les aérosols pourraient avoir un impact sur les restitutions des colonnes totales d'ozone. D'importantes différences également observées au-dessus des hautes latitudes peuvent s'expliquer par la dégradation de la précision de GOME-2 aux angles solaires zénithaux plus élevés dans ces régions-là (Weber et al., 2005; Balis et al., 2007) mais aussi par le faible signal enregistré par IASI dû aux basses températures caractérisant ces régions.

Mesures au sol

Les colonnes totales IASI ont également été comparées pour l'année 2008 avec des mesures de colonnes totales d'ozone fournies par des instruments au sol de type Brewer et Dobson (mesurant dans l'UV-vis), situées à différentes stations de mesure du WMO (World Meteorological Organization), qui sont dispersées sur tout le globe. La majorité des mesures de colonne totale d'ozone obtenues depuis le sol est fournie par les spectrophotomètres Dobson et Brewer. Les colonnes totales d'ozone peuvent être obtenues soit à partir de mesures du rayonnement solaire direct ou au zénith, soit à partir d'observations focalisées sur la lune.

L'instrument Dobson, développé dans les années 1920 (Dobson, 1931), utilise quatre longueurs d'onde (deux paires) pour déterminer les colonnes totales d'ozone. Les paires les plus utilisées sont les doubles paires AD (305.5/325.5 nm and 317.6/339.8 nm) et CD (311.45/332.4 nm and 317.6/339.8 nm). Le spectrophotomètre Brewer, disponible depuis les années 1980 (Brewer, 1973) repose sur le même principe que l'instrument Dobson. Cependant, l'instrument utilise plusieurs paires de longueurs d'onde (cinq longueurs d'onde situées entre 306.3 and 320.1 nm sont utilisées pour dériver les colonnes totales d'ozone). Les deux instruments présentent des performances similaires (Kerr et al., 1988). La précision d'une colonne totale d'ozone varie de 1 à 3% selon le mode d'observation (rayonnement solaire direct ou au zénith). Les mesures de colonnes totales d'ozone provenant du réseau Brewer-Dobson ont été utilisées intensément dans de nombreux travaux, notamment pour la validation de données satellitaires (Weber et al., 2005; Balis et al., 2007).

Dans cette étude, seules les données du réseau Brewer-Dobson, obtenues à partir de mesure du rayonnement solaire direct et au zénith, ont été utilisées. Ces données ont été fournies par le WOUDC (World Ozone and Ultraviolet Data Center, <http://www.woudc.org>). La localisation ainsi qu'une description brève des stations de mesure correspondantes sont données dans les tableaux 5.2 et 5.3 et sur la figure 5.5. Le format de données actuellement utilisé correspond à des valeurs de colonne totale d'ozone journalière exprimées en unités Dobson. Pour chaque station, les données ont été comparées aux mesures IASI colocalisées à $\pm 0.5^\circ$ en latitude et longitude et effectuées le même jour d'observation. Les mesures IASI autour d'une mesure au sol ont alors été moyennées.

Tab. 5.2 - Numéro, nom, localisations, altitude des stations du réseau Dobson utilisées pour la validation de l'ozone total IASI.

Numéro des stations WMO	Nom des stations (pays)	Latitude, °N	Longitude, °E	Altitude, m
105	Fairbanks (college) (USA)	64.82	-147.87	138
43	Lerwick (Grande-Bretagne)	60.13	-1.18	80
53	Uccle (Belgique)	50.80	4.35	100
96	Hradec Kralove (République Tchèque)	50.18	15.83	285
99	Hohenpeissenberg (Allemagne)	47.80	11.02	975
20	Caribou (USA)	46.87	-68.03	192
35	Arosa (Suisse)	46.78	9.68	1840
19	Bismarck (USA)	46.77	-100.75	511
40	Haute Provence (France)	43.93	5.70	674
474	Lannemezan (France)	43.13	0.37	597
12	Sapporo (Japon)	43.06	141.33	19
410	Amberd (Arménie)	40.38	44.25	2070
67	Boulder (USA)	40.09	-105.25	1689
208	Xianghe (Chine)	39.98	116.37	80
293	Athens (Grèce)	37.98	23.75	195
107	Wallops Island (USA)	37.90	-75.48	13
252	Seoul (Corée)	37.57	126.95	84
213	El Arenosillo (Espagne)	37.10	-6.73	41
341	Hanford (USA)	36.32	-119.63	73
106	Nashville (USA)	36.25	-86.57	182
14	Tateno / Tsukuba (Japon)	36.06	140.10	31
464	University of Tehran (Iran)	35.73	51.38	1419
152	Cairo (Egypte)	30.08	31.28	37
10	New Delhi (Inde)	28.49	77.16	247.5
409	Hurghada (Egypte)	27.28	33.75	7
190	Naha (Japon)	26.20	127.68	27
74	Varanasi (Inde)	25.32	83.03	76
209	Kunming (Chine)	25.03	102.68	1917
245	Aswan (Egypte)	23.97	32.78	193
2	Tamanrasset (Algérie)	22.80	5.52	1377
31	Mauna Loa (USA)	19.53	-155.57	3405
218	Manila (Philippines)	14.63	121.43	61
216	Bangkok (Thaïlande)	13.67	100.61	53
317	Lagos (Niger)	6.60	3.33	10
214	Singapour (Singapour)	1.33	103.88	14
84	Darwin (Australie)	-12.42	130.88	31
191	Samoa (USA)	-14.25	-170.56	82
27	Brisbane (Australie)	-27.42	153.12	3
343	Salto (Uruguay)	-31.40	-57.97	31
159	Perth (Australie)	-31.92	115.95	2
91	Buenos Aires (Argentine)	-34.58	-58.48	25
253	Melbourne (Australie)	-37.74	144.90	128.5
256	Lauder (Nouvelle Zélande)	-45.03	169.68	370
342	Comodoro Rivadavia (Argentine)	-45.78	-67.50	43
29	Macquarie Island (Australie)	-54.50	158.97	6
339	Ushuaia (Argentine)	-54.85	-68.31	15
233	Marambio (Argentine)	-64.23	-56.62	196
101	Syowa (Japon)	-69	39.58	21
268	Mcmurdo (Argentine)	-77.83	166.66	215
111	Amundsen-Scott (Argentine)	-89.98	0	2820

Tab. 5.3 - Numéro, nom, localisation, altitude des stations du réseau Brewer utilisées pour la validation de l'ozone total IASI.

Numéro des stations WMO	Nom des stations (pays)	Latitude, °N	Longitude, °E	Altitude, m
262	Sodankyla (Finlande)	67.34	26.51	179
284	Vindeln (Suisse)	64.24	19.77	225
165	Oslo (Norvège)	59.91	10.72	90
279	Norrkoeping (Suisse)	58.58	16.15	43
352	Manchester (Grande-Bretagne)	53.48	-2.23	76
174	Lindenberg (Allemagne)	52.21	14.12	112
316	De Bilt (Pays-Bas)	52.10	5.18	9.5
318	Valentia observatory (Irlande)	51.93	-10.25	14
353	Reading (Grande-Bretagne)	51.45	-0.93	66
53	Uccle (Belgique)	50.80	4.35	100
96	Hradec Kralove (République Tchèque)	50.18	15.83	285
331	Poprad-Ganovce (Slovaquie)	49.03	20.32	706
99	Hohenpeissenberg (Allemagne)	47.80	11.02	975
100	Budapest-Lorinc (Hongrie)	47.43	19.18	139
35	Arosa (Suisse)	46.78	9.68	1840
326	Longfengshan (Chine)	44.73	127.60	317
405	La Corogne (Espagne)	43.33	-8.47	62
411	Zaragoza (Espagne)	41.63	-0.91	250
308	Madrid / Barajas (Espagne)	40.46	-3.65	650
348	Ankara (Turquie)	39.95	32.88	896
447	Goddard (USA)	38.99	-76.83	100
346	Murcia (Espagne)	38.00	-1.17	69
213	El Arenosillo (Espagne)	37.10	-6.73	41
295	Mt. Waliguan (Chine)	36.29	100.90	3810
332	Pohang (Corée)	36.03	129.38	6
336	Isfahan (Iran)	32.48	51.43	1550
376	Mrsa Matrouh (Egypte)	31.33	27.22	35
349	Lhasa (Chine)	29.67	91.13	3640
10	New Delhi (Inde)	28.49	77.16	247.5
95	Taipei (Taiwan)	25.02	121.48	25
30	Minamitorishima (Japon)	24.30	153.97	9
468	Cape d'Aguilar (Hong Kong)	22.21	114.26	60
187	Poona (Inde)	18.53	73.85	559
322	Petaling jaya (Malaisie)	3.10	101.65	61
475	Bandung (Inde)	-6.90	107.58	731
473	Punta Arenas (Chili)	-53.14	-70.88	3
351	King George Island (Uruguay)	-62.18	-58.90	10
454	San Martin (Argentine)	-68.13	-67.10	30
314	Belgrano II (Argentine)	-77.87	-34.63	255

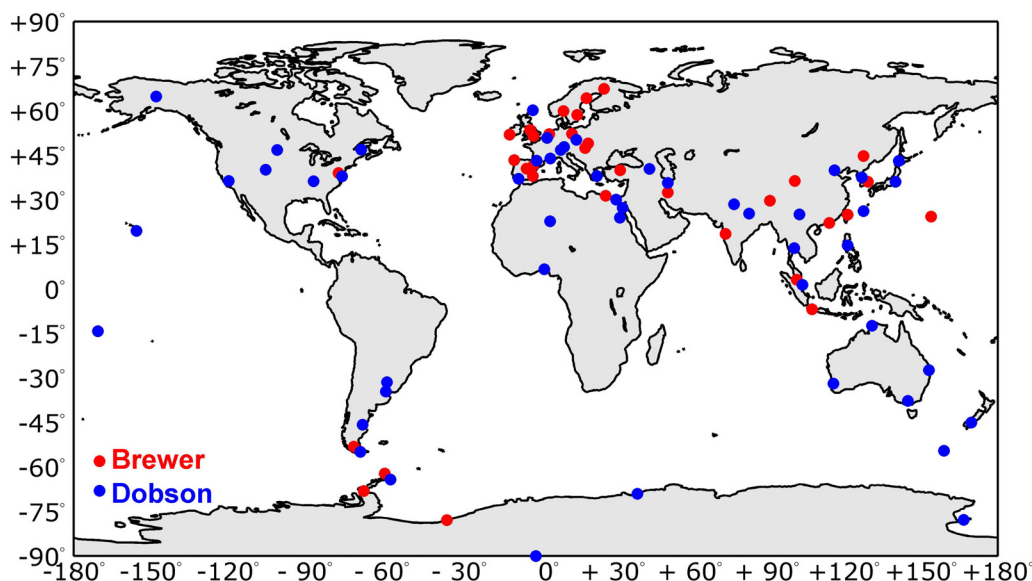


Fig. 5.5 - Localisation géographique des stations de validation du réseau Brewer-Dobson utilisées dans ce travail.

La figure 5.6 représente la moyenne zonale des distributions de colonnes totales d'ozone calculée sur des bandes de 5° de latitude pour l'année 2008. L'accord entre IASI et les instruments au sol est globalement très bon. On observe une surestimation des inversions IASI qui apparaît plus importante aux moyennes latitudes de l'hémisphère sud, ce qui était déjà constaté lors des comparaisons entre les inversions IASI et GOME-2. Les écart-types associés aux valeurs moyennes des colonnes totales IASI sont plus importantes que ceux associés aux valeurs moyennes obtenues à partir des mesures au sol, à l'exception des hautes latitudes où ces derniers augmentent. Les moyennes zonales présentées pour chaque saison confirment la présence d'un biais entre les inversions IASI et celles des instruments Dobson et Brewer. Ici encore les différences constatées sont probablement dues à la spectroscopie.

Une comparaison statistique directe des colonnes totales d'ozone a été réalisée pour l'année 2008 et pour chaque saison, et est représentée sur la figure 5.7. Le coefficient de corrélation, le biais moyen, l'écart-type et le nombre d'observations colocalisées sont également indiqués. En moyenne sur l'année, l'accord entre les deux distributions est très satisfaisant, avec un coefficient de corrélation de 0.85, un biais moyen d'environ 9.3 DU (~3%) et un écart-type d'environ 27 DU (9.8%). Des résultats similaires ont été trouvés lors des comparaisons avec les mesures GOME-2. La comparaison pour chaque saison montre que les inversions IASI et les mesures au sol sont en très bon accord, à l'exception de juillet-août-septembre où un coefficient de 0.65 est trouvé. Le biais le plus important est repéré en janvier-février-mars et en octobre-novembre-décembre.

Comme mentionné dans la partie précédente, le biais observé est dû principalement à la spectroscopie et partiellement aux différentes méthodes d'observation utilisées. De plus, le biais observé au niveau des tropiques autour de 10°N pourrait être dû à une représentation insuffisante des faibles colonnes d'ozone dans la base de données d'apprentissage du NN.

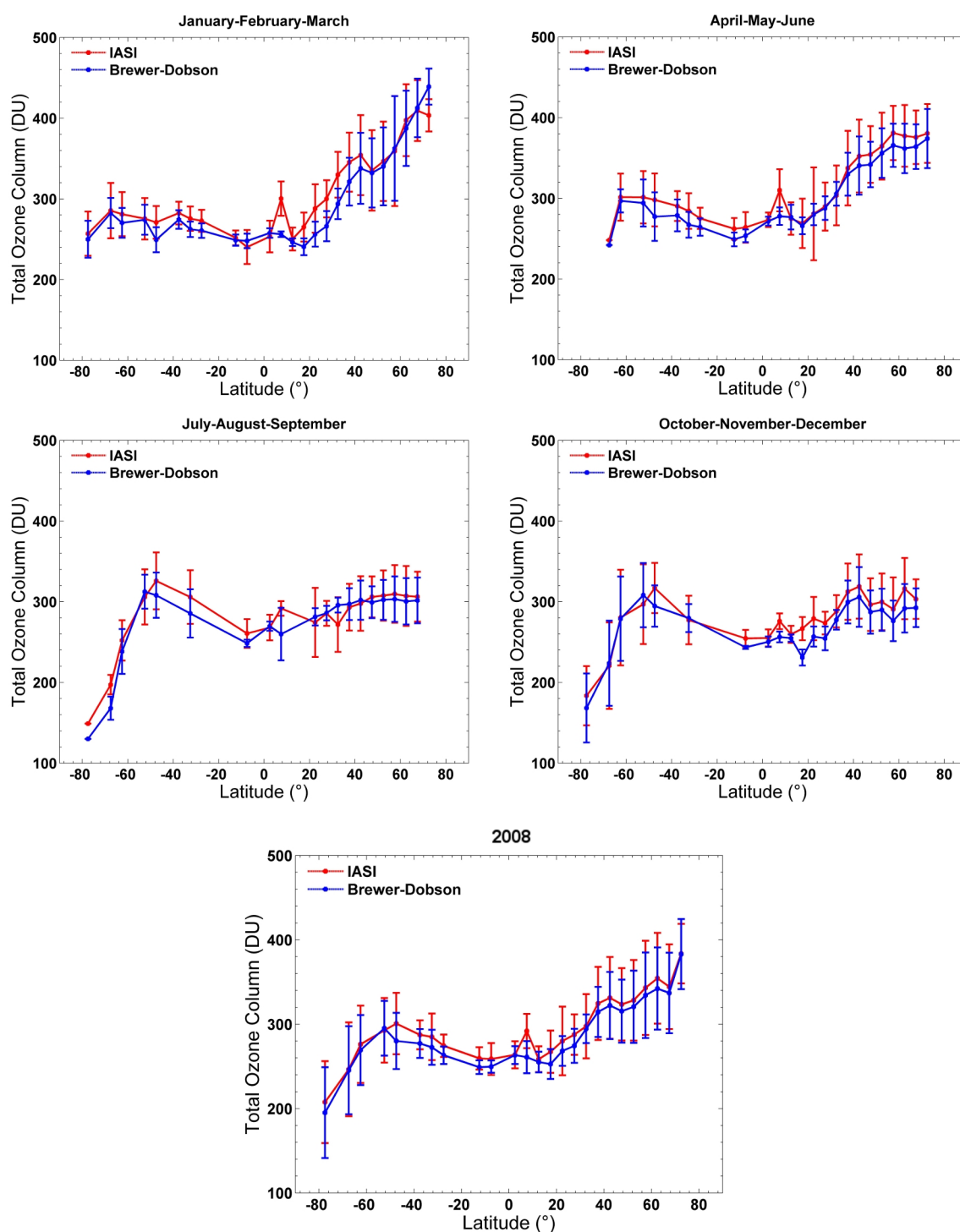


Fig. 5.6 - Colonnes totales d'ozone obtenues à partir des mesures IASI et des mesures au sol du réseau Dobson-Brewer, moyennées sur des bandes de latitudes de 5°, avec l'écart-type associé.

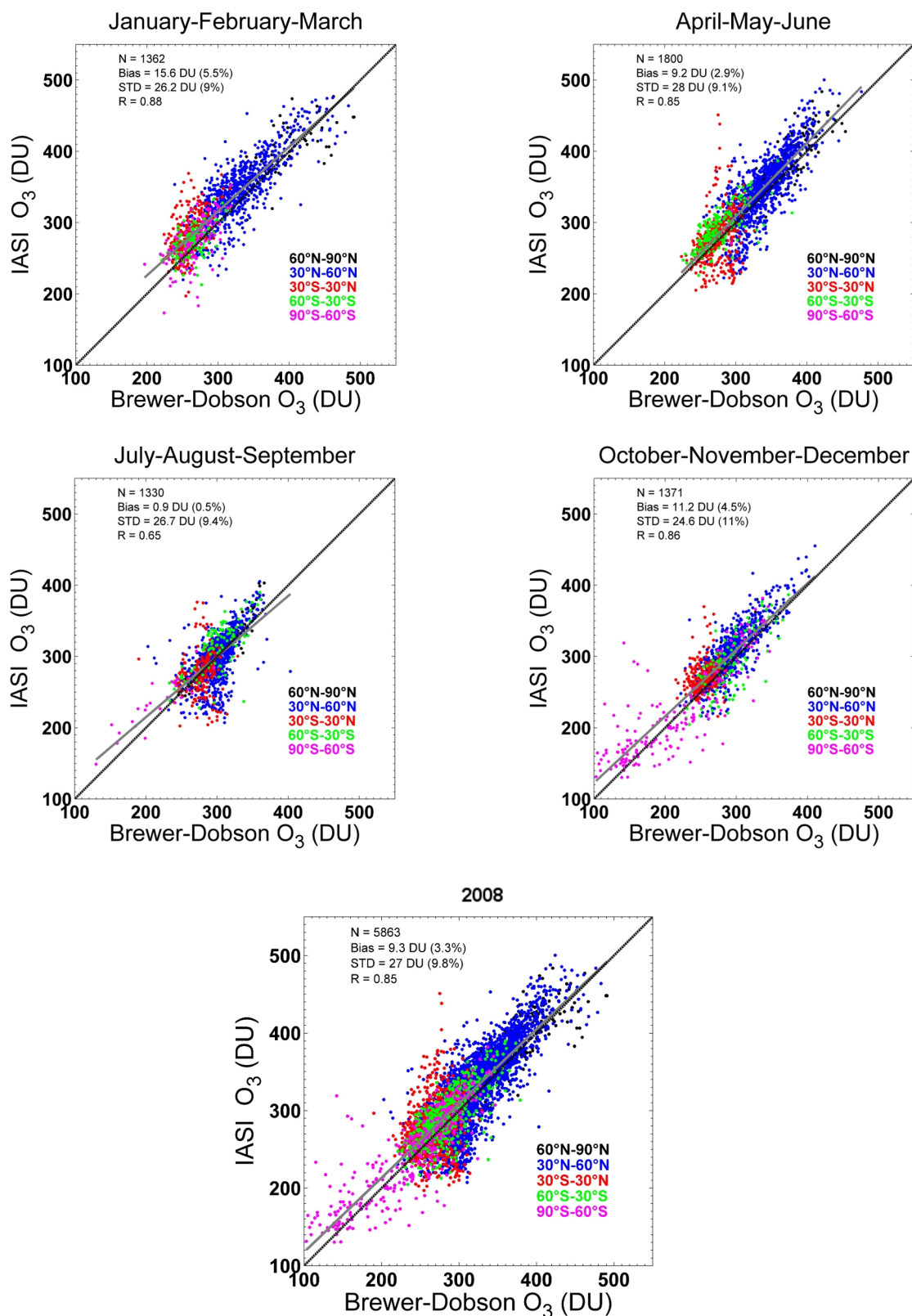


Fig. 5.7 - Corrélations entre les colonnes totales d'ozone obtenues avec IASI et les mesures au sol du réseau Dobson-Brewer. Le biais (en valeur relative) est calculé selon : $100 \times (\text{IASI-Dobson-Brewer}) / \text{Dobson-Brewer}$. Les couleurs correspondent à différentes bandes de latitude comme indiqué sur chaque figure.

5.1.2 Comparaison avec des mesures IR

Dans cette partie, les mesures IASI sont comparées aux mesures des instruments IR AIRS et TES qui ont été lancés à bord des satellites américains Aqua et Aura respectivement. Ces satellites, qui font partie de la même constellation, l'A-TRAIN, volent en orbite polaire héliosynchrone et passent au-dessus de l'équateur à 13 h 30 environ, heure locale. Ces instruments mesurant le rayonnement IR utilisent une technique d'observation similaire à IASI et sont donc sensibles à l'ozone aussi bien dans la troposphère que la stratosphère, ce qui leur permet de déterminer très précisément la colonne totale d'ozone, comme IASI.

Données AIRS

L'instrument AIRS est un spectromètre à haute résolution spectrale, couvrant le domaine de l'IR de 650 à 2675 cm^{-1} qui a été lancé, en orbite polaire, à bord du satellite Aqua de la NASA en 2002. A l'origine, AIRS fut conçu pour mesurer la vapeur d'eau dans l'atmosphère ainsi que des profils de température destinés aux prévisions météorologiques. Une de ses missions principales est aujourd'hui la surveillance de l'augmentation des niveaux globaux de CO_2 . Toutefois, AIRS permet également de mesurer les concentrations de constituants traces tels que le monoxyde de carbone (Comer, 2006; McMillan et al., 2005, 2008) et l'ozone (Divakarla et al., 2008). L'instrument AIRS utilise une géométrie au nadir avec un balayage perpendiculaire à la trace de l'orbite sur une fauchée d'environ 1650 km de large (près de deux fois plus petite que celle de IASI), permettant une bonne couverture globale. Son champ de vue est de 1.1° , ce qui correspond à un pixel au sol de 13.5 km de diamètre environ pour une visée au nadir. Sa résolution spectrale, de l'ordre de 1 cm^{-1} , est deux fois moins bonne que celle de IASI.

Les données AIRS de niveau 2 sont mises à disposition sur internet par le centre de données (Data Active Archive Center ou DACC) du GSFC (Goddard Space Flight Center) de la NASA. Ces données ont été restituées à partir de mesures "sans nuage" (Zhou et al., 2008) en utilisant la version 5 de l'algorithme de AIRS (AIRS V5), basé sur un ensemble de fonctions de perturbations trapézoïdales (Cormier et al., 2006). Les données sont filtrées à l'aide d'indicateurs de qualité qui sont fournis dans le guide intitulé "AIRS Level-2 Version 005 Standard Product" (<http://disc.sci.gsfc.nasa.gov/AIRS/documentation/>).

Données TES

L'instrument TES lancé à bord du satellite Aura en 2004 a été conçu pour mesurer la distribution verticale et globale de l'ozone ainsi que de ses précurseurs tel que le monoxyde de carbone (Beer et al, 2001; Beer, 2006). TES est un spectromètre à transformée de Fourier couvrant le domaine spectral de 650 à 3250 cm^{-1} . L'instrument sonde l'atmosphère avec une géométrie de visée au nadir (sans aucun balayage). La taille du pixel au nadir est de 5 x 8 km. TES est sur le satellite EOS-Aura en orbite polaire, à 705 km d'altitude.

Tab. 5.4 - Description des missions actuelles et des instruments qui mesurent le rayonnement IR en visée au nadir. Toutes ces missions sont sur une plateforme satellitaire en orbite polaire. Les spécifications sont données seulement pour le domaine spectral de l'IR et pour la géométrie au nadir.

Mission/plateforme	IASI/MetOp	AIRS/Aqua	TES/Aura
Agence	EUMETSAT/CNES	NASA (EOS)	NASA (EOS)
Date du lancement	Octobre 2006	Mai 2002	Juillet 2004
Disponibilité des données L1	Mai 2007	Août 2002	Août 2004
Altitude du satellite	817 km	705 km	705 km
Heure locale de passage à l'équateur	9 h 30	13 h 30	13 h 45
Orbite ascendante/descendante	Orbite descendante	Orbite ascendante	Orbite ascendante
Type d'instrument	FTS, 8461 canaux, OPD 2 cm	Spectromètre à réseau, 2378 canaux Pouvoir de résolution $\lambda/\Delta\lambda = 1200$	FTS, 4050 canaux, OPD 8.45 cm
Domaine spectral (cm ⁻¹)	645-2760	650-1136; 1216-1613; 2170-2674	650-3050
Taille du pixel	12 km de diamètre x 4 pixels	13.5 x 13.5 km x 9 pixels	5.3 x 8.3 km x 16 pixels
Couverture spatiale	Fauchée de 2200 km de large	Fauchée de 1650 km de large	Pas de balayage
Résolution spectrale	0.5 cm ⁻¹ (apodisé)	~1.8 cm ⁻¹	0.10 cm ⁻¹ (apodisé)
Précision radiométrique	<0.2 K (<1800 cm ⁻¹) (NeDT à 280 K)	0.2 K (NeDT à 280 K)	0.2 K (NeDT à 300 K)

L'algorithme d'inversion des concentrations d'ozone est basé sur l'OEM (Rodgers, 2000) et est décrit par Worden et al. (2004) et Bowman et al. (2002, 2006). Le profil vertical *a priori* d'ozone et la matrice de covariance associée proviennent d'une climatologie obtenue à partir du modèle MOZART (Brasseur et al., 1998; Park et al., 2004). Les données TES de niveau 2 ainsi que des indicateurs de qualité sont mis à disposition sur internet par le centre de données Langley Atmospheric Sciences Data Center (http://eosweb.larc.nasa.gov/PRODOCS/tes/table_tes.html). Une description détaillée de la version V004 de l'algorithme utilisé dans ce travail est donnée dans le document "TES Level 2 Data User's guide" (Osterman et al., 2009). Dans cette étude, seules les mesures au nadir sont utilisées.

Un résumé des principales caractéristiques des instruments IASI (c.f. chapitre 2 pour les caractéristiques détaillées), AIRS et TES est fourni dans le tableau 5.4.

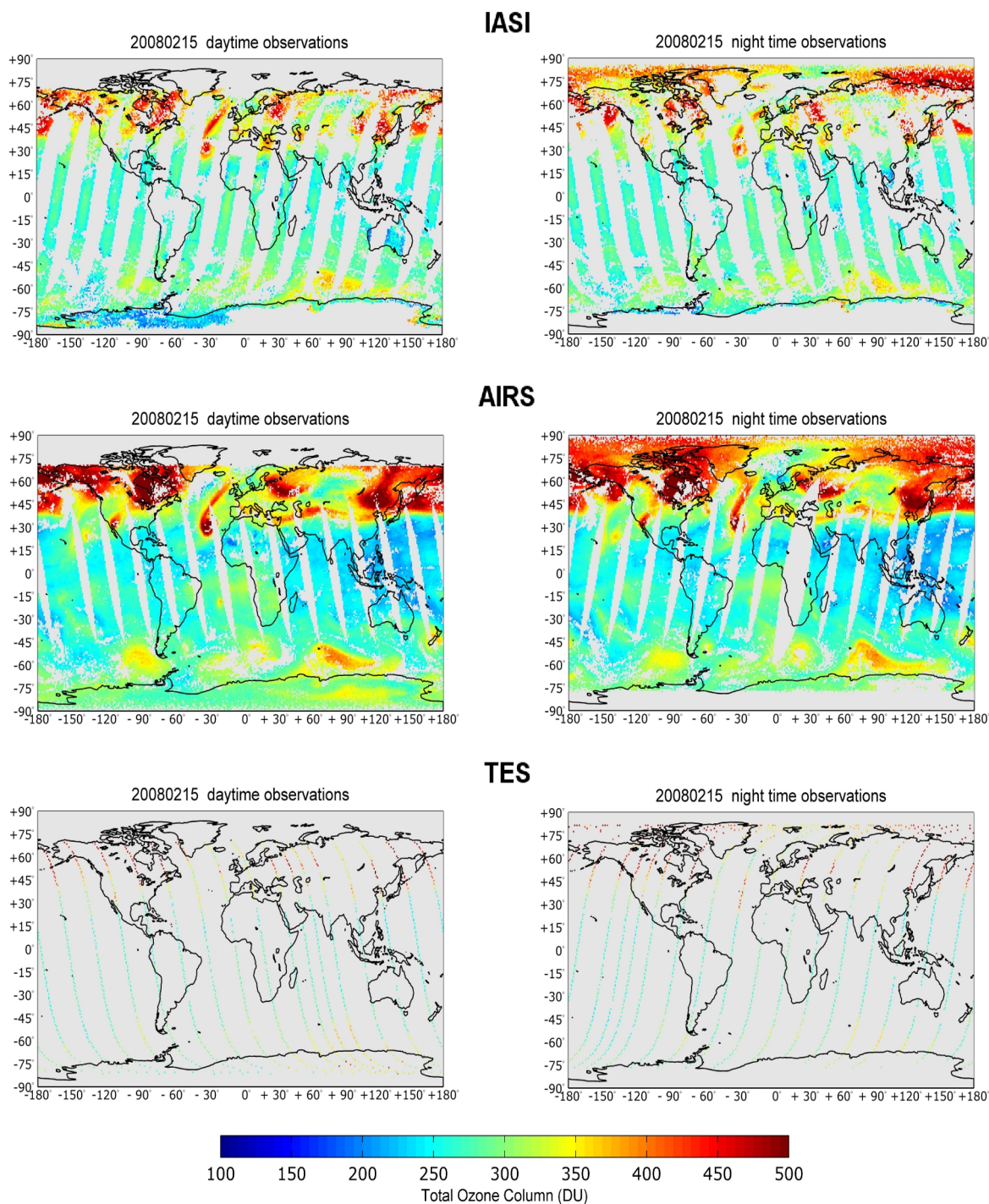


Fig. 5.8 - Distribution globale des colonnes totales IASI, AIRS et TES, moyennées sur une grille constante de $1^\circ \times 1^\circ$, pour des mesures de jour et de nuit "sans nuage" obtenues le 15 février 2008.

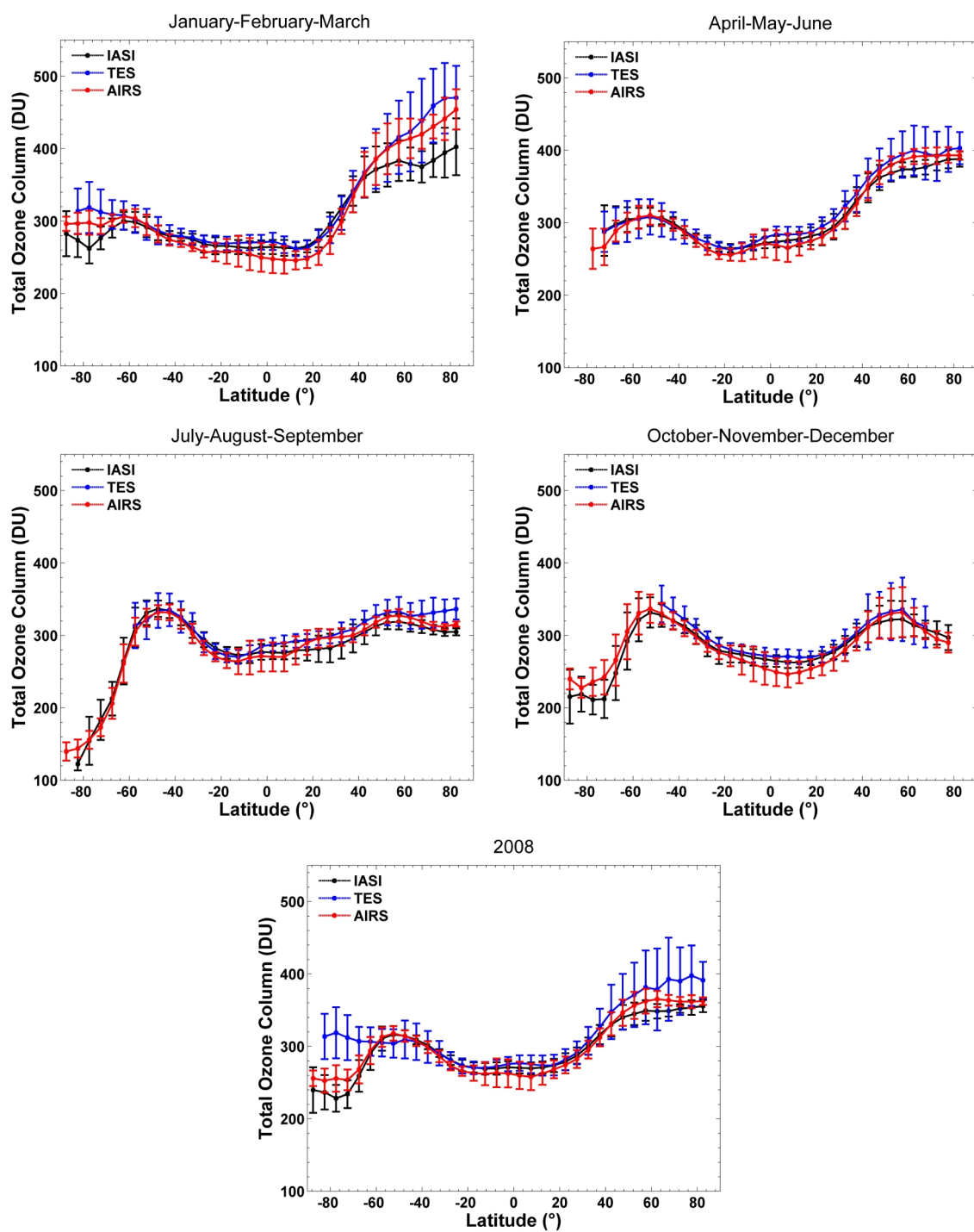


Fig. 5.9 - Colonnes totales d'ozone obtenues pour des mesures de jour IASI, TES et AIRS moyennées sur des bandes de latitude de 5°, avec l'écart-type associé.

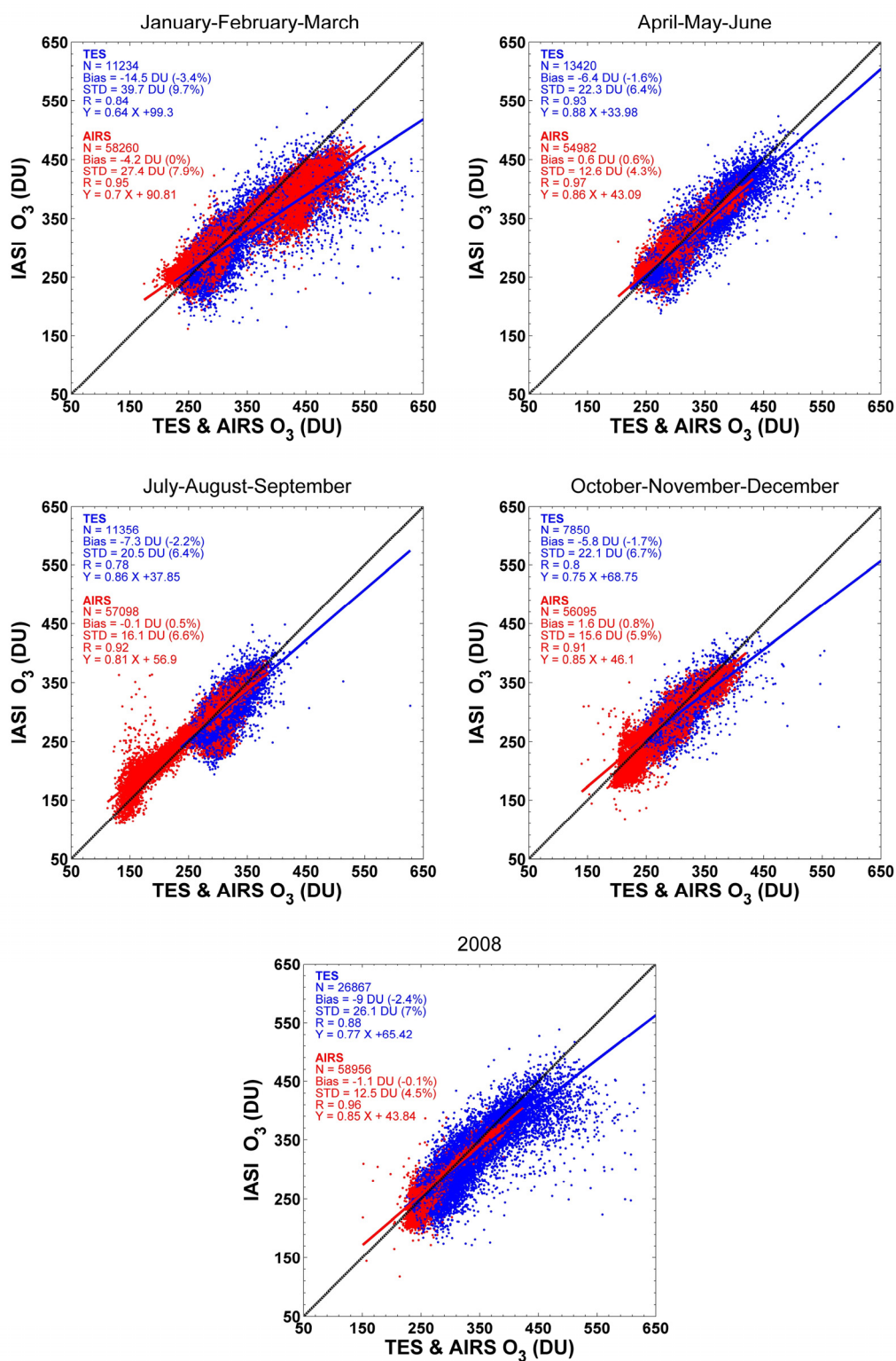


Fig. 5.10 - Corrélations entre colonnes totales IASI, TES et AIRS pour chaque saison et pour l'année 2008.

Résultats

La figure 5.8 illustrant les distributions de colonne totale d'ozone IASI, AIRS et TES le 15 février 2008, pour des mesures de jour et de nuit, met en évidence la très faible couverture spatiale de TES en comparaison avec celle de IASI et de AIRS. Ceci provient du fait que TES n'effectue des mesures qu'au nadir alors que le balayage de IASI et AIRS permet des mesures de part et d'autre du nadir. Bien que TES présente une excellente résolution spectrale, sa faible couverture spatiale ne lui permet pas d'observer certains événements tels que l'intrusion stratosphérique observée au-dessus de l'Atlantique Est par IASI et AIRS (une analyse complète de cet événement est fournie dans le chapitre 4). Bien que la fauchée de IASI (2200 km) soit plus grande que celle de AIRS (1650 km), les spectres IASI n'ont été utilisés dans notre travail que pour des angles (par rapport au nadir) inférieurs à 32° , ce qui explique la moins bonne couverture spatiale de IASI par rapport à AIRS, observée sur la figure 5.8. Ceci est dû aux limitations de l'algorithme *NN* aux grands angles.

Pour la comparaison avec les mesures AIRS et TES, nous avons procédé de la même façon que pour la comparaison avec les mesures au sol du réseau Dobson-Brewer (partie précédente). La figure 5.9 représente les colonnes totales ainsi que leur variabilité en fonction de la latitude, moyennées zonalement, sur des bandes de 5° de latitude, obtenues pour des mesures de jour. A l'échelle globale, l'accord entre les trois instruments est satisfaisant, notamment aux moyennes latitudes et aux tropiques où le biais est très faible, voire n'existe pas (entre IASI et AIRS). Bien que des différences entre les 3 instruments soient observées aux hautes latitudes, elles sont très légères entre IASI et AIRS en comparaison avec TES. Les inversions TES surestiment largement les colonnes totales par rapport aux inversions AIRS et IASI. A l'échelle de la saison, on constate les mêmes tendances.

Une comparaison statistique des colonnes totales de IASI avec celles de TES et AIRS est représentée sur la figure 5.10. La comparaison avec TES montre que le biais moyen est de -9 DU, l'écart-type de 26.1 DU et la corrélation très proche de 0.9. La comparaison avec AIRS montre un biais moyen de l'ordre de -1 DU, un écart-type de 12.5 DU et une corrélation de 0.96. Ces résultats montrent tout d'abord de très bonnes corrélations entre les instruments et d'autre part une tendance des inversions IASI à sous-estimer ou TES à surestimer les colonnes totales.

Les instruments mesurant dans l'IR présentent l'avantage de fournir des observations de jour et de nuit, contrairement aux instruments mesurant dans l'UV-vis. Les résultats obtenus pour les mesures de nuit sont similaires à ceux obtenus pour des mesures de jour et ne sont pas présentés ici.

L'accord entre les trois instruments, que ce soit des mesures de jour ou de nuit, est globalement très bon. Les distributions présentent de très bons coefficients de corrélation, ce qui montre le potentiel de IASI à mesurer la variabilité de la colonne totale d'ozone.

D'importantes différences sont observées au-dessus des hautes latitudes, notamment entre IASI et TES. Ces différences proviennent principalement du rapport signal sur bruit qui est faible dans ces régions. Des différences plus locales peuvent être attribuées aux observations qui ne sont pas exactement colocalisées ou encore aux pixels partiellement nuageux qui ont été conservés après le filtre. De la même façon que pour les mesures GOME-2, les algorithmes d'inversion utilisent une information *a priori* différente, ce qui peut induire des différences lors des inversions.

Tab. 5.5 - Tableau récapitulatif des statistiques obtenues pour les comparaisons entre les colonnes totales obtenues à partir des mesures IASI et celles obtenues avec AIRS, TES, GOME-2 et les mesures au sol du réseau Brewer-Dobson.

	Coefficient de corrélation	Biais moyen	Ecart-type
IASI/AIRS	0.96	-1.1 DU (-0.1%)	12.5 DU (4.5%)
IASI/TES	0.88	-9 DU (-2.4%)	26.1 DU (7%)
IASI/GOME-2	0.96	9.3 DU (3.2%)	10.3 DU (3.4%)
IASI/Brewer-Dobson	0.85	9.3 DU (3.3%)	27 DU (9.8%)

5.1.3 Conclusions

De manière générale, les comparaisons entre IASI et les différents instruments mesurant dans l'UV-vis et l'IR ont montré de très bons résultats, avec notamment des corrélations meilleurs que 0.85. Un résumé des statistiques obtenues pour les différentes comparaisons est donné dans le tableau 5.5. On constate que les inversions IASI ont tendance à sous-estimer les colonnes totales par rapport aux inversions AIRS et TES qui mesurent dans l'infrarouge alors qu'on observe une tendance opposée par rapport aux mesures GOME-2 et au sol mesurant dans l'UV-vis. Comme nous l'avons mentionné dans la section 5.1.2, la principale source de différence entre les mesures IR et UV-vis est la spectroscopie.

Afin de tenir compte des différences de sensibilité et de méthodes d'inversion utilisées, qui représentent des sources non négligeables des différences observées, il aurait été plus correct d'utiliser les fonctions de lissage ainsi que l'information *a priori* associées aux différents instruments (Rodgers and Connors, 2003). Cependant la méthode d'inversion utilisant la technique des *NN* ne permet pas de fournir facilement ces paramètres. Malgré cela, ces comparaisons directes ont permis de donner une première évaluation des capacités de IASI à mesurer la colonne totale d'ozone. La partie suivante est consacrée à la validation des colonnes partielles d'ozone, en particulier dans la troposphère.

5.2 Ozone troposphérique

Dans cette section, j'ai utilisé le code *Atmosphit* afin de restituer des profils verticaux d'ozone à partir des spectres IASI.

5.2.1 Comparaison avec des mesures de sonde d'ozone

Les sondes d'ozone permettent de mesurer des profils verticaux de la surface à la stratosphère (30-35 km) avec une très haute résolution verticale (~100 m) et une précision de $\pm(5-10)\%$ (Smit et al., 2007; Thompson et al., 2003). Des colonnes partielles d'ozone peuvent ainsi être obtenues dans la troposphère.

Tab. 5.6 - Localisation des stations de sondes d'ozone, sources des données et nombre de coïncidences utilisées pour la validation des colonnes troposphériques d'ozone.

Station de sonde d'ozone	Latitude, °N	Longitude, °E	Altitude, m	Source de données	Nombre de données de sonde colocalisées
Summit (Groenland)	72.6	-38.5	3211	GMD	37
STN221 (Legionowo, Pologne)	52.4	21.0	96	WOUDC	33
STN318 (Obs. de Valentia, Irlande)	51.9	-10.2	14	WOUDC	43
STN156 (Payerne, Suisse)	46.8	6.9	491	WOUDC	95
STN012 (Sapporo, Japon)	43.1	141.3	19	WOUDC	27
STN308 (Madrid/Barajas, Espagne)	40.4	-3.6	650	WOUDC	37
Boulder (USA)	40.0	-105.2	1743	GMD	33
STN107 (Iles Wallops, USA)	37.9	-75.5	13	WOUDC	40
STN014 (Tsukuba Taten, Japon)	36.1	140.1	31	WOUDC	40
STN190 (Naha, Japon)	26.2	127.7	27	WOUDC	24
Hilo (Hawaii, USA)	19.4	-155.0	11	GMD	31
Nairobi (Kenya)	-1.3	36.8	1795	SHADOZ	19
Java (Indonésie)	-7.5	112.6	50	SHADOZ	5
STN323 (Neumayer, Antarctique)	-70.7	-8.3	42	WOUDC	26

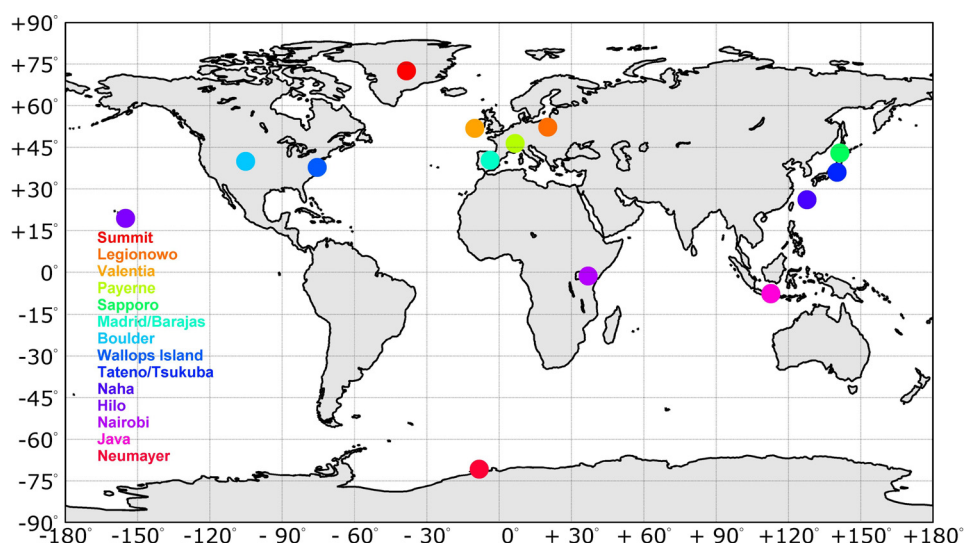


Fig. 5.11 - Localisation géographique des 14 stations de validation de sondes d'ozone utilisées dans ce travail.

Les mesures de sonde ont été obtenues à partir des trois archives suivantes : WOUDC, SHADOZ (Southern Hemisphere Additional Ozonesondes, <http://croc.gsfc.nasa.gov/shadoz>) et GMD (Global Monitoring Division, NOAA, <http://www.esrl.noaa.gov/gmd>). Quatorze stations qui ont effectué des mesures pendant la période juin 2007-août 2008 ont été sélectionnées. Elles sont représentatives de différentes latitudes, incluant les moyennes latitudes, les régions polaires et tropicales, et fournissant des observations colocalisées aux mesures IASI à l'intérieur d'un carré de 110 km de

longueur et avec une coïncidence temporelle de 12 h (tableau 5.6 et figure 5.11). Ce travail s'inscrit dans un exercice d'inter-comparaison d'algorithmes d'inversion entrepris pour valider les produits IASI (Keim et al., 2009).

Les sondes utilisées dans cette étude sont majoritairement basées sur la cellule ECC (Electrochemical Concentration Cell) dont le principe de mesure repose sur la réaction de l'iodure de potassium avec l'ozone. Les sondes japonaises utilisent la cellule KC (carbon-iodine) qui est une variante de la sonde ECC.

Après application de différents filtres (nuage, erreur RMS) sur les inversions IASI, la validation des colonnes d'ozone troposphérique a été entreprise sur un jeu de 490 mesures de sondes et 4028 observations IASI colocalisées et sans nuage pour la période s'étendant de juin 2007 à août 2008.

Les mesures de sonde étant effectuées avec une très haute résolution verticale ont besoin d'être lissées de façon à prendre en compte la plus basse résolution verticale de IASI, ce qui nous permet une comparaison significative avec les profils d'ozone restitués. Les profils de sonde d'ozone lissés $x_{\text{lissé}}$ ont été calculés à partir des profils mesurés x_s selon l'équation suivante (Rodgers and Connor, 2003) :

$$x_{\text{lissé}} = x_a + A(x_s - x_a) \quad (5.1)$$

Comme les sondes fournissent les profils verticaux seulement jusqu'à 30-35 km, les profils de sondes ont été raccordés au profil *a priori* au-delà.

Un exemple de comparaison entre un profil d'ozone restitué à partir d'une observation IASI effectuée au-dessus de la station de Legionowo en Pologne et le profil sonde mesuré à cette station est illustré sur la figure 5.12a. La figure montre que le profil restitué est en bon accord avec le profil sonde. Pour cet exemple, les différences relatives par rapport aux mesures de sonde lissées (figure 5.12b) n'excèdent pas 30%. La figure montre également que l'erreur de mesure (IASI) est plus faible que les différences entre les deux profils.

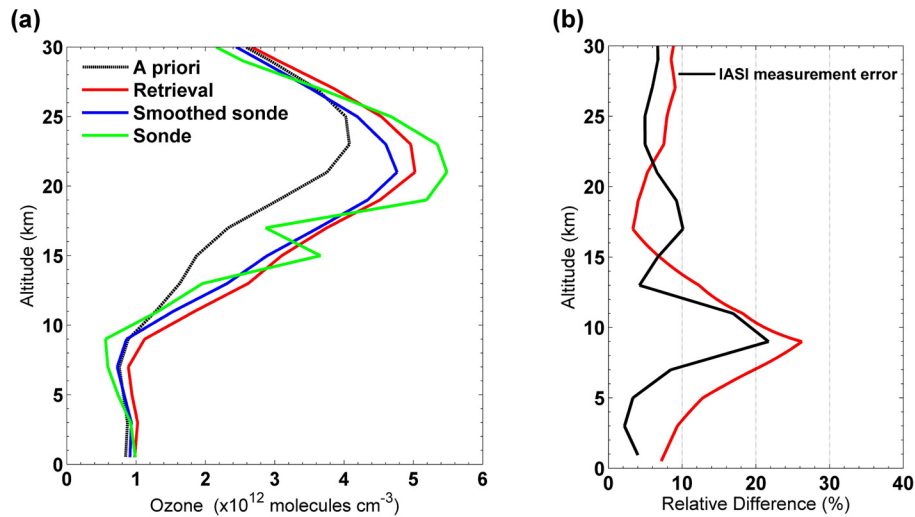


Fig. 5.12 - Exemple d'un profil d'ozone restitué à partir d'une observation IASI effectuée le 9 janvier 2008 au-dessus de la station de Legionowo (Pologne) avec le profil sonde mesuré à cette station (avant et après lissage). (b) Différences relatives (rouge) calculées par rapport au profil sonde lissé. L'erreur de mesure IASI (noir) est également présentée.

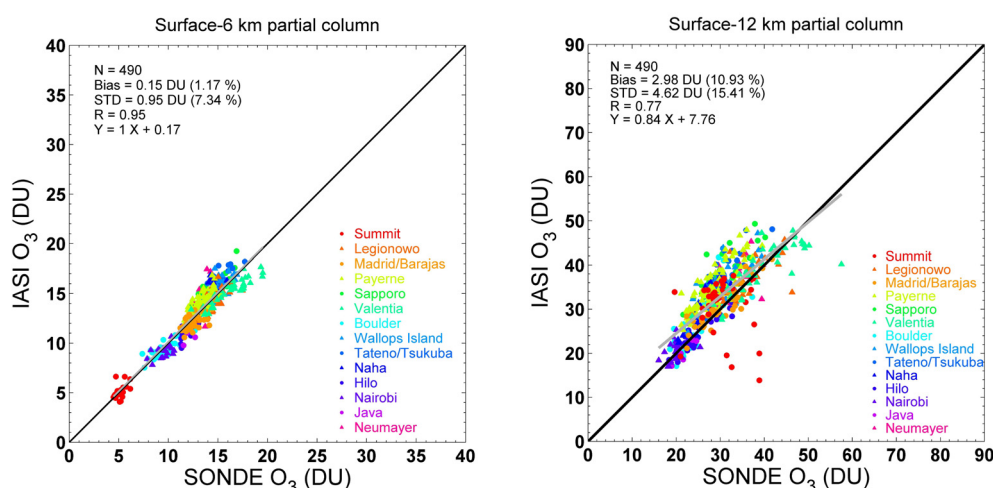


Fig. 5.13 - Corrélations entre des colonnes troposphériques d'ozone obtenues avec IASI et les sondes pour la période juin 2007-août 2008. Le biais (en valeur relative) est calculé selon: $100 \times (\text{IASI-Sonde})/\text{Sonde}$. D'après Boynard et al. (2009)

Une validation statistique des colonnes troposphériques obtenues à partir des mesures IASI par rapport aux mesures sondes est présentée sur la figure 5.13. Nous avons comparé deux colonnes partielles, correspondant aux couches intégrées [surface-6 km] et [surface-12 km]. Les profils sonde ont été lissés par les fonctions de lissage correspondantes, selon l'équation 5.1. L'accord entre les deux colonnes (IASI et sonde) est très satisfaisant, avec un coefficient de corrélation de 0.95 pour la colonne partielle [surface-6 km]; il est moins satisfaisant pour la colonne partielle [surface-12 km] (coefficient de corrélation de 0.77), ce qui peut s'expliquer par un certain nombre de différences dont la définition de l'altitude de la tropopause. Les restitutions IASI tendent à surestimer les colonnes d'ozone troposphériques par rapport aux mesures sondes. On note un léger biais de 0.15 DU (1.2%) pour la colonne partielle [surface-6 km] alors que la colonne partielle [surface-12 km] présente un biais de 3 DU (11%). Les comparaisons entre les mesures de sondes d'ozone et les inversions TES mettent également en évidence une tendance à surestimer l'ozone troposphérique (de 4 DU) (Osterman et al., 2008). Des résultats similaires ont également été rapportés par Nassar et al. (2008). La comparaison sans lissage permet de voir l'importance du lissage qui est naturellement plus grand pour la colonne [0-6 km] (c.f. Keim et al., 2009).

Le tableau 5.7 donne une comparaison détaillée, par région, altitude et saison. On notera que certaines valeurs peuvent ne pas être significatives en raison du peu de données disponibles. Les résultats montrent que l'altitude a un impact sur les colonnes partielles [surface-6 km]; l'accord est meilleur pour des stations situées en altitude. Ceci est dû à la sensibilité de IASI qui est maximale dans la troposphère libre mais en général faible près de la surface. Cet impact n'est par contre pas observé pour les colonnes partielles [surface-12 km]. Les comparaisons par bandes de latitude peuvent parfois difficilement être réalisées en raison du manque de stations de sondes, en particulier aux hautes latitudes et aux tropiques. A l'échelle globale, la comparaison par saison montre que l'accord entre les colonnes partielles obtenues à partir des inversions IASI et des sondes est meilleur pour les périodes avril-mai-juin et juillet-août-septembre. Les résultats sont assez bons pour la colonne partielle [0-6 km] (les erreurs sont très faibles) et montrent que ce que IASI "voit" est vrai.

Tab. 5.7 - (a) Corrélation, biais (IASI-sonde) et écart-type (1σ) de la colonne troposphérique d'ozone par rapport aux données au sol, par bandes de latitude et par altitude pour chaque saison. Le biais et l'écart-type sont donnés en unité Dobson.

	Jan-Fév-Mar		Avr-Mai-Juin		Jui-Août-Sep		Oct-Nov-Dec	
	Corr	Biais (1σ)	Corr	Biais (1σ)	Corr	Biais (1σ)	Corr	Biais (1σ)
Colonnes partielles [surface-6 km]								
Toutes latitudes	0.94	0.06 (0.96)	0.97	-0.22 (0.90)	0.95	-0.11 (0.94)	0.84	0.39 (1.03)
Hautes latitudes	0.99 ¹	-0.09 (0.77)	1.00 ¹	0.01 (0.41)	0.97 ¹	0.35 (1.18)	0.53 ¹	0.54 (0.80)
Moyennes latitudes	0.89	0.18 (0.96)	0.91	-0.28 (0.93)	0.92	-0.06 (0.80)	0.92	0.53 (0.78)
Tropiques	0.96 ¹	-0.82 (0.78)	0.93	-0.18 (1.03)	0.83	-0.65 (1.03)	0.71 ¹	-0.32 (1.73)
Stations situées au niveau de la mer	0.79	0.10 (1.07)	0.80	-0.16 (1.04)	0.76	-0.12 (1.16)	0.61	0.21 (1.16)
Stations en altitude	0.97	0.01 (0.80)	0.98	-0.30 (0.68)	0.98	-0.11 (0.70)	0.96	0.68 (0.71)
Colonne partielle [surface-12 km]								
Toutes latitudes	0.63	1.44 (5.57)	0.80	1.76 (4.52)	0.81	2.09 (4.10)	0.68	2.34 (4.45)
Hautes latitudes	0.14 ¹	-3.04 (9.95)	0.09 ¹	0.69 (6.82)	0.75 ¹	4.46 (3.66)	0.31 ¹	1.96 (4.41)
Moyennes latitudes	0.75	2.52 (4.30)	0.79	2.43 (3.95)	0.79	2.51 (3.82)	0.75	3.29 (3.89)
Tropiques	0.79 ¹	-2.75 (3.81)	0.73	0.21 (3.98)	0.66	-1.22 (3.60)	-0.24 ¹	-1.48 (4.95)
Stations situées au niveau de la mer	0.70	1.84 (4.98)	0.82	2.22 (4.05)	0.82	2.01 (4.18)	0.60	1.36 (4.87)
Stations en altitude	0.42	0.89 (6.34)	0.74	1.17 (5.03)	0.77	2.16 (4.05)	0.88	3.86 (3.23)

¹ Nombre de coïncidences inférieures à 20.

5.2.2 Comparaison avec le modèle CHIMERE

CHIMERE est un modèle de chimie-transport permettant de simuler les concentrations d'ozone en Europe avec une résolution horizontale de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ (c.f. chapitre 2). Dans la version que nous utilisons, le modèle décrit verticalement des concentrations dans 17 couches allant de la surface à 12 km d'altitude environ. Ainsi, tout comme pour les mesures de sondes, des colonnes partielles d'ozone peuvent être dérivées dans la troposphère.

Dans cette section, nous comparons les colonnes partielles [surface-6 km] et [surface-12 km] IASI à celles simulées par le modèle CHIMERE pendant les étés 2007 et 2008. Pour la comparaison, nous avons extrait les simulations CHIMERE colocalisées spatialement aux stations de sondes utilisées dans la section précédente. Comme pour le travail de comparaison avec les sondes, différents filtres (nuage, erreur RMS) ont été appliqués aux inversions avant d'effectuer les comparaisons. La comparaison des colonnes d'ozone troposphérique a été entreprise sur un jeu de 93 profils CHIMERE et 736 observations IASI colocalisées pour la période d'étude.

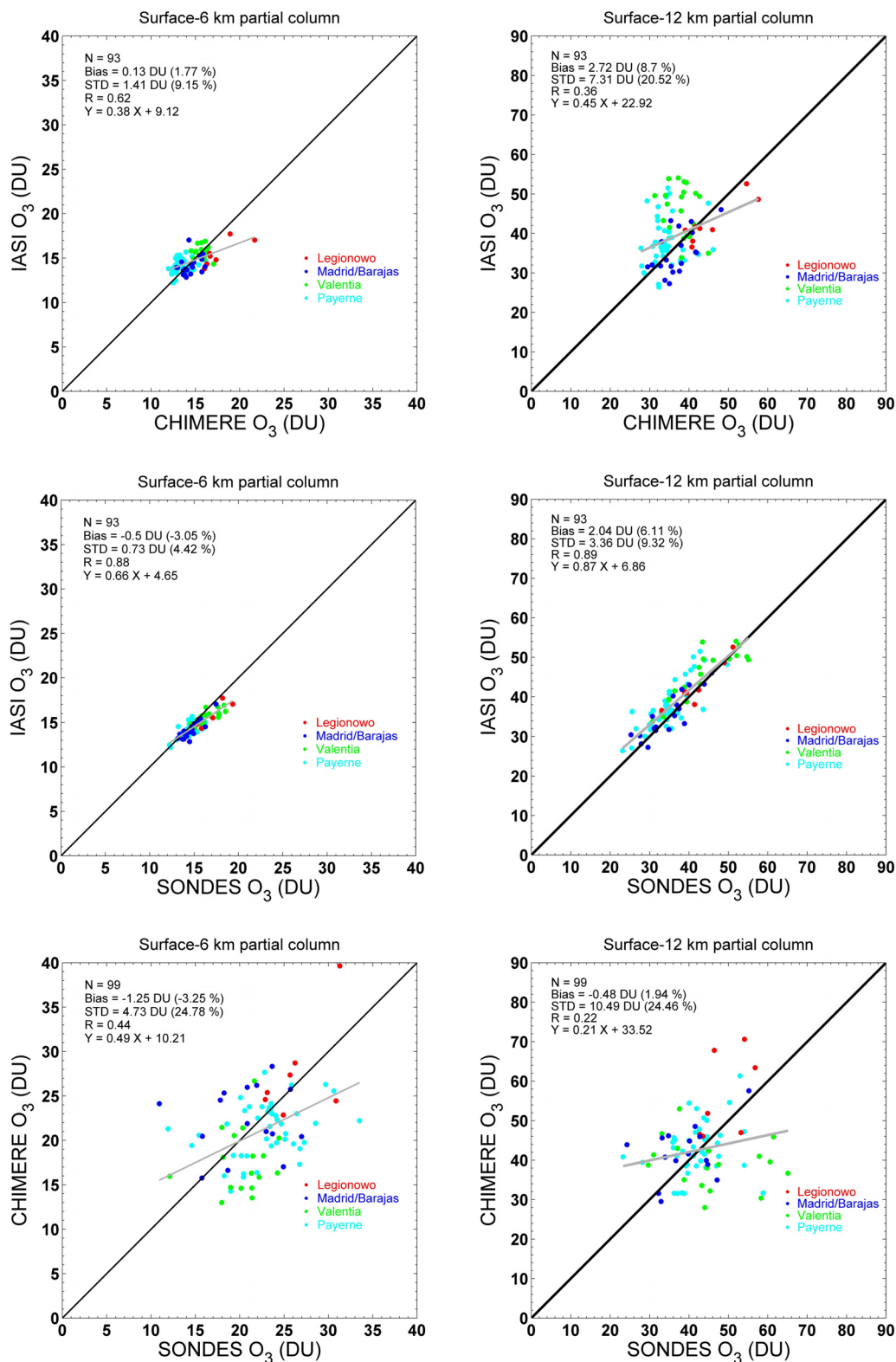


Fig. 5.14 - Corrélations entre des colonnes troposphériques d'ozone obtenues avec IASI, les sondes et CHIMERE pour les étés 2007 et 2008. Les fonctions de lissage n'ont pas été appliquées dans les deux figures du bas.

Les concentrations simulées par le modèle CHIMERE ont une meilleure résolution verticale que les mesures IASI. Ainsi, tout comme pour les mesures de sondes, les profils CHIMERE ont été lissés selon l'équation 5.1. Comme CHIMERE fournit les profils verticaux seulement jusqu'à 12 km d'altitude environ, les profils ont été raccordés au profil *a priori* au-dessus avant le lissage.

La comparaison des colonnes partielles [surface-6 km] et [surface-12 km] obtenues à partir des mesures IASI et des simulations CHIMERE est présentée sur la figure 5.14 (figures du haut). L'accord entre les colonnes [surface-6 km] IASI et CHIMERE est assez satisfaisant, avec un coefficient de corrélation de 0.6 environ. Par contre les résultats sont moins bons pour les colonnes [surface-12 km] où l'on trouve une corrélation de 0.36. On constate en particulier que les colonnes simulées par CHIMERE au-dessus de Valentia (en Irlande) qui est localisée sur le côté ouest du domaine et de Payerne (en Suisse) qui est localisée en altitude sont en désaccord avec les inversions IASI.

Nous avons également comparé les colonnes inversées IASI à celles obtenues avec les sondes (après lissage) pour la même période et les mêmes stations et les résultats illustrés sur la figure 5.14 (milieu) montrent un excellent accord entre les colonnes avec des corrélations de 0.88 et 0.89 pour les colonnes [surface-6 km] et [surface-12 km] respectivement.

Les comparaisons entre les colonnes CHIMERE et celles déduites des mesure sondes, présentées sur la figure 5.14 (figures du bas) montrent que les colonnes ne sont pas en très bon accord. On obtient des corrélations inférieures à 0.5 pour les deux colonnes. Les désaccords entre les simulations CHIMERE et les mesures de sondes sont obtenus aux mêmes endroits (Valentia et Payerne) que les désaccords entre les inversions IASI et les simulations CHIMERE.

Ces résultats, bien que très préliminaires, montrent que les simulations CHIMERE ne paraissent pas très fiables dans la troposphère libre, notamment aux limites du domaine. Ceci peut s'expliquer en partie par le fait que des climatologies issues de modèles globaux sont utilisées comme conditions aux limites du modèle. Or ces climatologies sous-estiment la variabilité par rapport à la réalité. Ainsi il faut tenir compte des observations satellitaires afin de mieux contraindre le modèle à ses limites, et donc, afin d'améliorer les conditions de fond d'ozone.

5.3 Résumé et conclusions

Dans ce chapitre, nous avons analysé les inversions des colonnes totales et troposphériques d'ozone obtenues à partir des luminances mesurées par l'instrument IASI pour plus d'un an de mesures.

Les colonnes totales d'ozone ont été comparées aux colonnes obtenues par des instruments mesurant dans l'UV-vis (GOME-2 et mesures au sol du réseau Dobson-Brewer) et des instruments mesurant dans l'IR (TES et AIRS). La comparaison avec les observations GOME-2 et les mesures au sol a montré un très bon accord avec des coefficients de corrélation supérieurs à 0.9 et 0.85, respectivement. En moyenne un biais positif de 9 DU environ (~3.3%) a été trouvé. Des résultats similaires ont été trouvés dans Massart et al. (2009) qui ont comparé les inversions IASI (en utilisant le *NN*) avec les colonnes totales obtenues à partir des mesures combinées MLS (Microwave Limb

Sounder) et SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric Chartography). La comparaison avec les mesures IR a montré un excellent accord, avec des coefficients de corrélation supérieurs à 0.9, globalement. L'incompatibilité (au niveau de ~4%) des sections efficaces de l'ozone dans l'UV et des intensités des raies infrarouges (Picquet-Varrault et al., 2005) sont en partie à l'origine des différences observées. Contrairement aux comparaisons avec les mesures UV-vis, un biais moyen négatif de -9 DU a été trouvé entre IASI et TES alors qu'un biais beaucoup plus faible, de -1.1 DU, a été trouvé entre IASI et AIRS.

Les colonnes totales mesurées par l'instrument GOME-2, également à bord de MetOp-A, ont permis de vérifier le potentiel de IASI à mesurer une colonne totale de bonne qualité. L'utilisation des mesures au sol du réseau Brewer et Dobson a permis de consolider la validation des colonnes totales. Les instruments IR présentent l'avantage de fournir des mesures de jour comme de nuit; la comparaison avec les instruments TES et AIRS a permis de compléter la validation des colonnes totales, notamment pour les mesures de nuit.

Nous avons également effectué les restitutions de profils d'ozone à partir des mesures IASI colocalisées à 490 mesures de sondes entre juin 2007 et août 2008. Des colonnes partielles dans la troposphère ont pu être dérivées. Les comparaisons ont montré que l'ozone troposphérique est également bien mesuré, avec des coefficients de corrélation de 0.95 et 0.77 pour les colonnes [surface-6 km] et [surface-12 km], respectivement. Les comparaisons des colonnes troposphériques inversées IASI avec celles simulées par CHIMERE et celles dérivées des sondes au-dessus de l'Europe ont montré que les observations IASI peuvent être utilisées dans CHIMERE afin d'améliorer les conditions de fond de l'ozone.

Les travaux portant sur l'inversion et la validation des données IASI ont montré des résultats très satisfaisants. Cependant plusieurs limitations subsistent dans les méthodes d'inversion utilisées. Tout d'abord l'algorithme *NN* ne permet pas de représenter correctement certaines situations (émissivités de surface extrêmes, relief, mesures aux grands angles de part et d'autre du nadir). Cette limitation est due notamment à la difficulté de construire un ensemble d'apprentissage représentatif. D'autre part, le code *Atmosphit* ne permet pas de restituer des profils d'ozone de manière opérationnelle, ce qui limite fortement la validation des profils IASI notamment dans la troposphère et à l'échelle globale. Dans ce contexte, une version optimisée du code *Atmosphit* pour l'inversion en quasi temps réel des profils d'ozone (dont l'intégration permet de dériver des colonnes totales et troposphériques) est en cours de développement. Ce nouveau code est une adaptation du code FORLI (Fast Operational/Optimal Retrieval on Layers for IASI) actuellement utilisé pour l'acide nitrique (Wespes et al., 2009) et le monoxyde de carbone (George et al., 2009; Turquety et al., 2009).

Ces travaux obtenus dans le cadre de ma thèse ont donné lieu à une publication (Boynard et al., 2009, c.f. Annexe F). D'autre part, les profils d'ozone restitués avec le code *Atmosphit* ont été mis à disposition auprès de l'équipe de spectroscopie du LISA pour mener une étude générale d'inter-comparaison de différents algorithmes d'inversion entreprise pour valider les produits IASI en Europe (Keim et al., 2009).

Chapitre 6

Evaluation de la covariance d'erreur des champs d'ozone simulés par le modèle CHIMERE par une méthode d'ensemble

Une des motivations de cette thèse est d'utiliser des données satellitaires afin d'améliorer les modèles de chimie-transport par une méthode d'assimilation de données, ici basée sur le Filtre de Kalman d'Ensemble. Comme nous l'avons introduit dans le chapitre 1, une information cruciale pour l'assimilation de données est la matrice de covariance d'erreur du modèle. Sa construction est cependant délicate car on ne dispose généralement pas de sources d'information suffisantes pour sa détermination quantitative.

Une approximation des covariances d'erreur du modèle peut être obtenue en utilisant une approche statistique. Pour cela on peut considérer un ensemble de différentes simulations d'un même modèle utilisant différentes configurations ou bien un ensemble de simulations de plusieurs modèles différents. Ces simulations représentent les membres de notre ensemble. Ces membres doivent être choisis de manière à représenter de façon réaliste l'erreur du modèle. Toute la difficulté de la mise en œuvre de l'ensemble réside dans le choix des membres, c'est-à-dire dans le choix des paramètres qui vont être perturbés afin de réaliser les différentes simulations. La covariance d'erreur du modèle peut alors être calculée à partir de l'ensemble construit.

Dans ce chapitre, une introduction à la modélisation d'ensemble est présentée dans un premier temps. Une étape essentielle avant de construire l'ensemble consiste à identifier les paramètres physiques et chimiques auxquels l'ozone simulé est le plus sensible. Ce sont ces paramètres qui seront perturbés lors de la mise en œuvre de l'ensemble. Dans ce cadre, une étude de sensibilité du modèle CHIMERE a été réalisée afin de tester l'effet de modifications des paramètres physiques et chimiques du modèle sur les concentrations d'ozone, et est présentée dans une deuxième partie. Nous décrivons ensuite la méthode de perturbation des paramètres d'entrée mise en œuvre. Puis nous présentons l'évaluation de différentes configurations de l'ensemble construit à l'aide d'observations. Enfin une dernière partie donne les conclusions que l'on peut tirer en vue d'une utilisation de l'ensemble dans le cadre de l'assimilation.

6.1 Introduction à la modélisation d'ensemble

Cette section théorique d'introduction à la modélisation d'ensemble s'inspire des notes de cours sur la prévision d'ensemble de Vivien Mallet (2008) disponible sur le site web <http://vivienmallet.net/publications/>.

Après avoir rappelé les différentes sources d'incertitudes dues à la modélisation, nous détaillons les différentes méthodes d'ensemble existantes puis les méthodes qui permettent d'évaluer la qualité d'un ensemble.

6.1.1 Sources d'incertitudes de la modélisation et formulation de l'ensemble

Comme nous l'avons présenté dans le chapitre 2, un modèle de chimie-transport est une représentation physique de la réalité qui se base sur l'équation de conservation de la masse :

$$\left(\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial t} \right) + \nabla(\mathbf{u}\mathbf{c}) = \nabla(\mathbf{K}\nabla\mathbf{c}) + \mathbf{P} - \mathbf{L} \quad (6.1)$$

avec \mathbf{c} un vecteur comprenant les concentrations de tous les constituants chimiques à tous les points de grille du modèle, \mathbf{u} le vecteur vitesse du vent, \mathbf{K} le tenseur de diffusivité turbulente, et \mathbf{P} et \mathbf{L} représentant respectivement les termes de production et de pertes.

Bien évidemment les modèles ne simulent pas les concentrations de molécules gazeuses de manière parfaite. Il existe donc des incertitudes dans les modèles qui ont des origines différentes :

- les paramètres d'entrée comme par exemple les variables météorologiques issues d'un modèle météorologique, les inventaires d'émissions de polluants primaires ou d'utilisation des sols.
- à défaut de formulations physiques explicites et rigoureuses, la prise en compte des processus dans les modèles repose souvent sur des paramétrisations entachées d'une certaine incertitude. En général, différentes paramétrisations (équations) physiques peuvent être utilisées, sans qu'on puisse conclure facilement à la supériorité d'une paramétrisation sur une autre. Par exemple, les vitesses de dépôt d'ozone peuvent être calculées à partir de la paramétrisation issue de Wesely (1989) ou bien celle de Zhang et al. (2003). Si l'on compare les vitesses obtenues à partir des différentes paramétrisations, une dispersion de 30% est constatée (Wesely et Hicks, 2000). Un autre exemple est la paramétrisation de la turbulence verticale.
- les schémas numériques tels que le pas de temps, la résolution verticale ou encore la hauteur de la première couche atmosphérique.

Nous considérons maintenant $\hat{\mathbf{c}}$ un ensemble de vecteurs de concentrations aléatoires par rapport à une distribution prédéfinie (par exemple avec une moyenne et un écart-type prédéfinis). Un ensemble de modèles permet d'échantillonner la distribution des vecteurs

$\hat{\mathbf{c}}$ à partir des réalisations \mathbf{c}_i , $i=1, \dots, N$ où \mathbf{c}_i est le vecteur concentration du modèle et N est le nombre de modèles dans l'ensemble. La moyenne de l'ensemble est alors notée :

$$\bar{\mathbf{c}}_N = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{c}_i \quad (6.2)$$

et sa matrice de covariance peut être écrite de la façon suivante :

$$\mathbf{\Sigma}_N = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\mathbf{c}_i - \bar{\mathbf{c}}_N)(\mathbf{c}_i - \bar{\mathbf{c}}_N)^T \quad (6.3)$$

Notons, que les éléments diagonaux de cette matrice représentent la variance, c'est-à-dire la dispersion de l'ensemble. Un ensemble "bien choisi" (c.f. section 6.1.4) permet d'estimer l'incertitude due aux simulations, information qui est essentielle notamment en assimilation de données. La matrice de covariance de l'état, notée généralement \mathbf{P} dans le formalisme du filtre de Kalman, peut être définie par :

$$\mathbf{P} = E[(\hat{\mathbf{c}} - \mathbf{c}^t)(\hat{\mathbf{c}} - \mathbf{c}^t)^T] \quad (6.4)$$

où \mathbf{c}^t est le vecteur état réel (de concentrations dans notre cas). Or le vecteur \mathbf{c}^t étant inconnu, on suppose qu'une bonne approximation de ce vecteur est la moyenne de l'ensemble :

$$\mathbf{P} \approx E[(\hat{\mathbf{c}} - \bar{\mathbf{c}}^N)(\hat{\mathbf{c}} - \bar{\mathbf{c}}^N)^T] \quad (6.5)$$

On obtient alors l'approximation suivante $\mathbf{P} \approx \mathbf{\Sigma}_N$. C'est cette approximation qui est utilisée dans la méthode du Filtre de Kalman d'Ensemble pour laquelle un ensemble de prévisions est donc nécessaire pour approcher la matrice de covariance d'erreur.

Ainsi la modélisation d'ensemble désigne une technique combinant des simulations utilisant différentes configurations afin d'obtenir non seulement une estimation de grandeurs moyennes telles que les concentrations moyennes d'ozone, mais aussi leur dispersion autour de la moyenne. Cette dispersion constitue une estimation de l'incertitude des modèles.

6.1.2 Les méthodes d'ensemble existantes

Historiquement, les méthodes d'ensemble ont été développées dans le domaine de la prévision météorologique afin d'estimer les bornes de fiabilité de ces modèles et d'effectuer des prévisions probabilistes (Toth et Kalnay, 1993, 1997; Molteni et al., 1996; Buizza et al., 1999). Au cours de ces dernières années, les techniques de modélisation d'ensemble ont également été appliquées à la modélisation de la qualité de l'air (par exemple Delle Monache et Stull, 2003). Il existe plusieurs méthodes de construction d'ensemble sans qu'une théorie unifiée ait été élaborée (au moins pour les modèles de la qualité de l'air) (Galmarini et al., 2004).

Un certain nombre de critères permet de classer les méthodes d'ensemble. Les membres de l'ensemble peuvent soit être dérivés à partir d'un seul modèle "parent" soit être constitués à partir de plusieurs modèles indépendants. Dans le premier cas, les paramètres d'entrée ou les champs d'entrée (ou internes) du modèle peuvent être perturbés de façon aléatoire et continue, ou de façon systématique et discontinue. On peut également distinguer les ensembles selon le type d'incertitude qui est pris en compte : incertitude sur les champs initiaux, sur d'autres données d'entrée (par exemple les émissions) ou sur les paramétrisations (ou modules) d'un modèle.

Dans le domaine de la modélisation de la qualité de l'air et du transport des espèces traces de l'atmosphère, différentes approches de modélisation d'ensemble ont été suivies au cours de ces dernières années selon les critères cités ci-dessus.

Méthodes Monte Carlo

Les méthodes d'ensemble héritées de l'approche de Monte Carlo reposent sur la génération de nombres aléatoires ou pseudo aléatoires pour représenter les incertitudes initiales. Ces méthodes s'appliquent généralement aux paramètres d'entrée continus ou aux données nécessaires aux paramétrisations physiques. Les paramétrisations qui correspondent à des variables discrètes (choix d'une paramétrisation ou d'une autre) ne sont en général pas modifiées.

L'étape essentielle de cette approche consiste à fixer *a priori* des distributions de probabilité de perturbations aux vecteurs aléatoires \hat{p} représentant l'ensemble des paramètres ou champs d'entrée continus et incertains. Les échantillons de la méthode de Monte Carlo sont tirés aléatoirement selon ces distributions de probabilité. Cette étape de modélisation des incertitudes est cruciale car elle conditionne directement les incertitudes sur les concentrations calculées. On peut considérer comme exemple la température atmosphérique qui peut être représentée comme une variable aléatoire, de distribution normale et d'écart-type qu'on peut fixer à 3 K. Cela signifie que la température atmosphérique est connue à ± 3 K en considérant un intervalle de confiance de 68% (Beekmann et Derognat, 2003). Souvent, on préfère une loi log-normale¹ car elle évite des valeurs négatives et elle est caractéristique de la distribution "naturelle" d'un certain nombre de grandeurs environnementales. Si l'on prend l'exemple du vent, il peut être négatif; on choisira donc une distribution normale. Pour de faibles amplitudes, les distributions normales et log-normales sont presque identiques.

Méthode multi-modèles

Une deuxième source d'incertitude dans la modélisation est la formulation physique du modèle, c'est-à-dire les paramétrisations physiques utilisées pour estimer les termes de l'équation de conservation de la masse (équation 6.1). Les changements dans la formulation du modèle étant discrets (c'est-à-dire qu'on remplace une équation par une autre), cette incertitude ne peut pas être aisément modélisée par une approche Monte Carlo. Une méthode alternative consiste alors à utiliser des simulations multi-modèles. Ces simulations peuvent tout simplement provenir soit de différents modèles de qualité de l'air,

¹ Une variable aléatoire X est dite suivre une loi log-normale de paramètres μ et σ si la variable $Y=\ln(X)$ suit une loi normale de paramètres μ et σ . μ et σ sont la moyenne et l'écart-type du logarithme de la variable aléatoire X .

ou bien d'un seul modèle. Dans ce dernier cas, le principe consiste à recenser les paramétrisations utilisées pour estimer chaque variable du modèle. On choisit un premier ensemble de paramétrisations pour chaque champ à estimer, ce qui permet de construire un premier modèle. Le deuxième modèle est construit à partir d'un autre ensemble de paramétrisations et ainsi de suite. Au final on obtient un ensemble de modèles, d'où l'approche multi-modèles.

Précisons que si l'objectif est de construire un ensemble représentatif de l'incertitude globale (c'est-à-dire englobant dans l'idéal la totalité des sources d'erreurs), les données d'entrée doivent également être perturbées. Cette technique a déjà été utilisée (Delle Monache et Stull, 2003; Galmarini et al., 2004; Mallet et Sportisse, 2006a et b; Vautard et al., 2006). Cependant, le nombre de modèles utilisés est généralement limité, et, en général, n'englobe pas la totalité des incertitudes puisqu'il est très difficile de rassembler assez de modèles pour pouvoir affirmer que l'estimation de l'incertitude est fiable.

Démarche suivie pour la construction de notre ensemble

La méthode d'ensemble que nous avons décidé de mettre en œuvre dans ce travail doit remplir un certain nombre de critères et/ou de contraintes. Tout d'abord cette méthode doit permettre une représentation globale des erreurs du modèle. Ensuite, l'ensemble doit être mis en œuvre à partir d'un modèle unique (puisque nous souhaitons l'utiliser ultérieurement pour l'assimilation de données dans un modèle). Enfin, l'ensemble doit correctement représenter la variabilité spatio-temporelle de l'erreur en privilégiant une approche physique par rapport à une simple application d'un bruit.

Ainsi, la méthode la plus appropriée afin de construire notre ensemble est ici la méthode de Monte Carlo. Nous avons pour cela réalisé N simulations avec le modèle dans différentes configurations pour lesquelles les paramètres d'entrée sont perturbés de manière aléatoire. Cette méthode permet une évaluation correcte de l'incertitude globale du modèle puisque toutes les données d'entrées sont perturbées en même temps. L'impact de l'incertitude d'une donnée d'entrée sur l'incertitude d'une concentration sera évidemment très variable spatialement et temporellement. Par exemple, la sensibilité des concentrations d'ozone à l'incertitude liée aux émissions sera la plus élevée dans les zones et périodes de forte production photochimique de l'ozone. Ainsi, perturber les paramètres d'entrée du modèle au lieu d'appliquer un bruit aléatoire aux concentrations offre théoriquement la possibilité de bien représenter la variabilité spatio-temporelle de l'incertitude. De plus, nous devons inclure dans notre approche l'incertitude sur les paramétrisations du modèle. Nous le ferons en fixant une incertitude sur les variables calculées à partir de ces paramétrisations (vitesse de dépôt, coefficient de diffusion verticale...).

6.1.3 Méthode d'évaluation de la qualité d'un ensemble

Quelle que soit l'approche de construction d'un ensemble, il faut toujours s'assurer que sa dispersion représente bien l'incertitude du modèle. Plusieurs approches d'évaluation de la qualité d'un ensemble ont été développées dans la littérature et sont présentées brièvement dans la suite. Toutes ces méthodes d'évaluation reposent sur une comparaison entre simulations et observations. Pour comparer l'ensemble aux observations, on compare la dispersion de l'ensemble (c'est-à-dire l'écart-type des concentrations d'ozone simulées par les différents membres) avec celle obtenue à partir des différences entre une simulation

de référence et les observations, celles-ci donnant une bonne estimation de l'erreur réelle du modèle, si on considère que les observations sont parfaites.

Le diagramme de Talagrand ou l'histogramme de rangs

L'évaluation du réalisme de l'ensemble peut être effectuée de manière classique à l'aide du diagramme de Talagrand (Talagrand et al., 1998; Hamill, 2000). Ce diagramme fournit une représentation de la fiabilité d'un ensemble (généralement allant sur une période d'un mois à une saison) en examinant la répartition des observations vis-à-vis des membres de l'ensemble. Pour chaque observation, les concentrations simulées par les membres de l'ensemble sont classées de la plus petite à la plus grande. La position de l'observation par rapport aux membres de l'ensemble est repérée par un indice variant de 0 à N (N étant le nombre de membres de l'ensemble). Si la concentration de l'observation est inférieure aux concentrations de tous les membres, l'indice est 0. Si la concentration de l'observation est comprise entre la plus petite et la suivante, l'indice est 1, ..., si la concentration de l'observation est supérieure aux concentrations de tous les membres, alors l'indice est N . L'opération est répétée pour toutes les observations et le nombre d'occurrences de chaque indice est calculé. L'histogramme de rangs représente le nombre d'occurrences en fonction de l'indice. Un exemple de ce diagramme est représenté sur la figure 6.1.

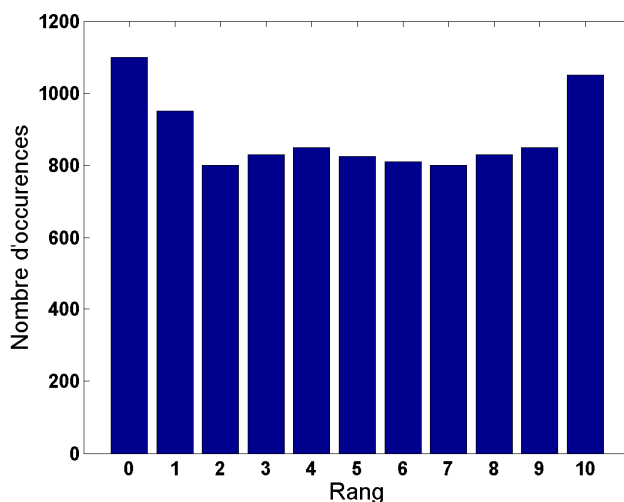


Fig. 6.1 - Exemple d'un histogramme de rangs (ou diagramme de Talagrand) pour un ensemble de 10 membres : nombre d'observations situées entre chaque membre.

L'analyse de la forme du diagramme de Talagrand permet de tirer des conclusions sur le biais du système d'ensemble et sur l'adéquation de sa dispersion. Un histogramme "plat" dans lequel toutes les barres sont égales (c'est-à-dire que la distribution des observations à l'intérieur de l'ensemble est équiprobable) indiquerait une qualité parfaite de l'ensemble. D'autres configurations du diagramme fournissent de l'information sur le type de biais et de dispersion. Un histogramme convexe indiquerait une trop grande dispersion de l'ensemble alors qu'un histogramme en forme de "U" (ou concave) indiquerait une trop

faible dispersion de l'ensemble. De plus un diagramme de rangs "penché" (ou asymétrique) dénote des biais systématiques de l'ensemble.

Cependant, une simple utilisation de l'histogramme de rangs peut amener à une fausse interprétation des qualités de cet ensemble. Un histogramme "plat" ne garantit pas forcément la fiabilité de l'ensemble. Un histogramme en forme de "U", usuellement interprété comme un manque de dispersion dans l'ensemble peut être dû à l'imperfection des observations qui sont généralement utilisées comme valeur de vérification; si elles ne sont pas prises en compte, les erreurs d'observation peuvent influencer la forme du diagramme (le "U" est plus accentué), même si l'ensemble est fiable.

Evaluation quantitative de l'ensemble

- Structure spatiale de l'écart-type des erreurs

Bien que l'histogramme de rangs permette d'évaluer la fiabilité d'un ensemble, cette évaluation est seulement qualitative. Afin d'évaluer quantitativement un ensemble, un moyen consiste à comparer la dispersion de l'ensemble à celle de la différence entre une simulation de référence et les observations. On peut ainsi avoir une première estimation de l'incertitude moyenne simulée par l'ensemble ainsi que des structures spatiales.

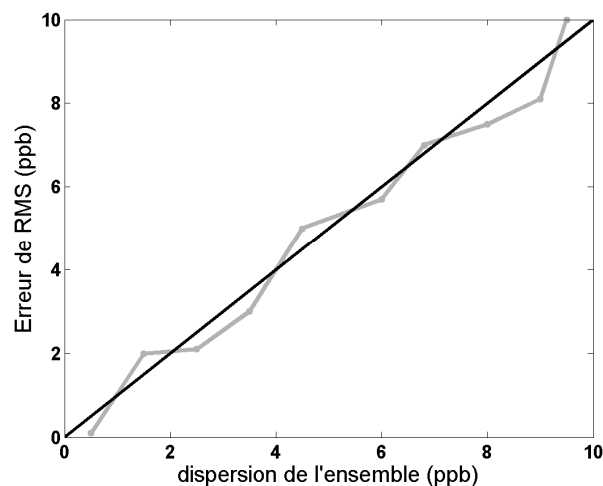


Fig. 6.2 - Exemple d'un diagramme de dispersion-erreur.

- Diagramme de dispersion-erreur (spread-skill diagram en anglais)

Afin d'évaluer l'ensemble non seulement en espace mais également en temps, on peut utiliser le diagramme de dispersion-erreur dont un exemple est illustré sur la figure 6.2. Ce diagramme compare la dispersion de l'ensemble à la moyenne quadratique de l'erreur (dite erreur RMS pour Root Mean Square en anglais) calculée à partir de la différence entre une simulation de référence et les observations. Cette comparaison est effectuée pour chaque observation disponible. Les paires de valeurs dispersion-erreur sont classées en fonction de la dispersion. S'il existe une corrélation importante entre ces deux grandeurs (points proche de la diagonale), alors l'ensemble exprime correctement l'erreur du modèle, non seulement en moyenne, mais aussi aux différents échéances et lieux.

– Corrélation spatiales entre les erreurs

Les méthodes géostatistiques permettent de façon générale d'étudier les relations spatiales entre grandeurs physiques (Wackernagel, 2003). Elles peuvent en particulier être appliquées à l'étude des corrélations spatiales des erreurs d'une simulation. La théorie de la géostatistique présente ces corrélations sous forme de variogramme dont l'expression théorique $\gamma(h)$ s'écrit :

$$\gamma(h) = \frac{1}{2} \text{var}[c(\mathbf{x}) - c(\mathbf{x} + h)]$$

où \mathbf{x} est le vecteur de coordonnées, c la concentration en \mathbf{x} , h la distance entre deux mesures et var la variance.

Ce diagramme quantifie le degré de dissemblance entre les paires de valeurs étudiées. Un variogramme classique est égal à zéro à l'origine puis croît régulièrement avec la distance jusqu'à atteindre une valeur seuil (appelée portée) au-delà de laquelle il reste constant. La figure 6.3 illustre le cas d'un variogramme régulier, on peut donc en déduire facilement sa relation avec la fonction de covariance. La pente plus ou moins forte de la courbe donne le taux avec lequel l'information à l'origine n'est plus significative. La valeur de la portée indique la distance au delà de laquelle deux valeurs ne sont plus corrélées.

Si on l'inverse graphiquement afin d'obtenir une fonction décroissante, le variogramme peut être interprété en termes de corrélation spatiale. Plus la distance entre deux mesures est importante et moins les mesures sont corrélées. Au-delà de la distance où le modèle de variogramme se stabilise (portée), la corrélation entre deux mesures est nulle; les mesures sont alors indépendantes de la distance.

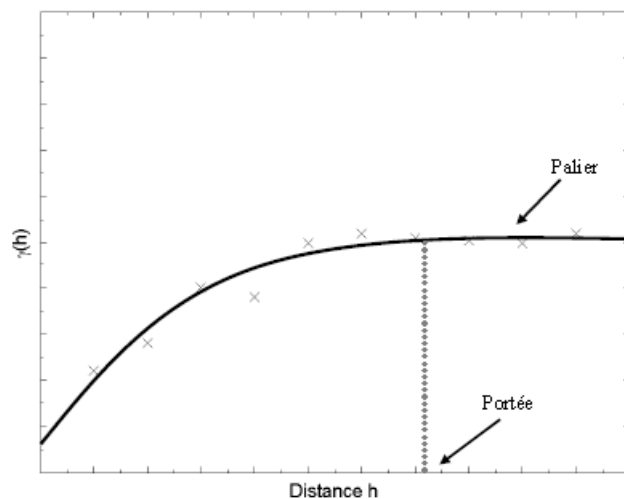


Fig. 6.3 - Exemple d'un variogramme expérimental (croix) et théorique (courbe noire).

6.2 Sensibilité du modèle CHIMERE à ses paramètres

6.2.1 Mise en place de l'étude de sensibilité

L'évaluation physique de l'incertitude du modèle implique de prendre en compte toutes les sources d'incertitude. Celles-ci sont issues de quatre processus distincts : les émissions, la chimie, la météorologie (incluant le transport) et le dépôt.

Dans cette étude de sensibilité, nous avons choisi de prendre en compte les incertitudes de la majorité des paramètres du modèle choisis dans les travaux de Beekmann et Derognat (2003) et Deguillaume et al. (2007). D'une part les incertitudes liées aux émissions (contribution majeure à la formation d'ozone) sont prises en compte. D'autre part, toutes les sources d'incertitude dues à la météorologie et au transport sont également considérées à l'exception de celle qui est liée aux flux de surface qui pilotent la turbulence dans la couche limite atmosphérique. Cependant cette source d'incertitude est implicitement prise en compte puisqu'on utilise les incertitudes liées à la hauteur de la couche limite et au taux de mélange vertical (Beekmann et Derognat, 2003). Enfin les réactions chimiques majeures contribuant à la production d'ozone (Menut et al., 2000, 2003) sont également considérées en tant que source d'incertitude. Seules les incertitudes sur les champs de vent et de température n'ont pas été prises en compte dans notre étude car la perturbation aléatoire de ces champs n'est pas possible. En effet, les champs de vent et de température sont calculés de façon cohérente par des modèles météorologiques (par exemple le vent géostrophique). Par ailleurs, une amélioration importante de la prévision de l'ozone de surface est attendue en utilisant une meilleure contrainte sur les concentrations d'ozone aux limites latérales du modèle CHIMERE et à son sommet. De ce fait, nous avons pris en compte les incertitudes dues aux conditions chimiques de bord (ozone et monoxyde carbone) afin d'évaluer leur influence sur le modèle. Le tableau 6.1 donne la liste exhaustive des paramètres qui ont été perturbés.

Par ailleurs, ce schéma prend en compte les incertitudes sur les paramétrisations de la turbulence verticale et sur le dépôt, en fixant des incertitudes directement sur le taux de mélange vertical et le taux de dépôt. En revanche, l'incertitude sur le schéma chimique n'est pas directement prise en compte, et nous faisons l'hypothèse qu'elle est incluse dans l'incertitude sur les constantes de vitesse et les fréquences de photolyse.

Afin d'identifier les paramètres du modèle ayant un impact important sur les concentrations d'ozone, nous avons utilisé une méthode de perturbation développée au LISA (Deguillaume et al., 2007) et permettant de perturber les 25 paramètres d'origine météorologique, physique ou chimique listés dans le tableau 6.1. Cette méthode présente l'avantage de pouvoir perturber un seul paramètre à la fois, ce qui permet de comparer les influences de différents paramètres indépendamment les uns des autres.

Nous nous intéressons à ce stade à des perturbations d'amplitudes égales ($\pm 20\%$ ou ± 10 ppb pour les conditions aux limites), ce qui nous permet de comparer leur influence respective sur le biais final du modèle. La période estivale étant une période susceptible de montrer les sensibilités les plus importantes en raison de l'importance du flux actinique et de l'intense activité du cycle photochimique troposphérique à cette période, nous avons réalisé cette étude de sensibilité pour le mois de juillet de l'année 2004, celle-ci étant une année relativement typique du point de vue de la pollution photo-oxydante (EEA, 2007).

Outre notre intérêt pour la pollution photo-oxydante dans la couche limite, nous nous intéressons également à la basse troposphère (autour de 3 km, pour laquelle les échanges avec la surface peuvent être importants (Forêt et al., 2009)).

6.2.2 Outils statistiques d'analyse

Deux variables statistiques, le biais et la moyenne quadratique de l'erreur (ou erreur RMS), sont utilisées pour analyser les résultats de l'étude de sensibilité.

Notons y le vecteur contenant les sorties du modèle de référence et y_e le vecteur contenant les sorties du modèle "perturbé" pour une maille donnée du modèle. Ces 2 vecteurs sont de dimension n ($n=31$ pour la comparaison d'une valeur horaire par jour du 1^{er} juillet au 31 juillet) et leurs moyennes sont notées \bar{y} et \bar{y}_e respectivement.

- Le biais correspond à l'écart entre les valeurs des sorties d'une simulation "perturbée" et celles de la simulation de référence. Si le biais est nul, cela signifie non pas que le modèle ne commet pas d'erreurs, mais que le modèle ne commet pas d'erreurs systématiques (c'est-à-dire qui se répètent). Le biais moyen s'écrit :

$$BIAS = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_{e_i} - y_i) \quad (6.6)$$

où n représente le nombre de jours considérés.

- La moyenne quadratique des différences entre concentrations de référence et concentrations perturbées donne une estimation de l'erreur totale que commet le modèle et s'écrit de la façon suivante :

$$RMS = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_{e_i} - y_i)^2} \quad (6.7)$$

Dans cette étude, on s'intéressera plus précisément au biais moyen relatif ($RBIAS$) et à l'erreur RMS relative associée ($RRMS$) qui s'écrivent de la façon suivante :

$$RBIAS = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{(y_{e_i} - y_i)}{\bar{y}} \quad \text{et} \quad RRMS = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{(y_{e_i} - y_i)^2}{\bar{y}^2}} \quad (6.8)$$

Dans la suite, nous présentons les comparaisons entre les concentrations d'ozone de surface à 10:00 (correspondant à l'heure de passage de IASI le matin) pour le mois de juillet 2004 obtenues à partir d'une simulation de référence et celles obtenues à partir d'une simulation pour laquelle les paramètres du modèle ont été perturbés indépendamment les uns des autres. La simulation de référence a été réalisée selon la configuration décrite dans le chapitre 2. Dans cette partie, nous utilisons la version du modèle décrite dans la section 2.4. Les conditions chimiques de bord utilisées sont des climatologies issues des simulations du modèle global MOZART (Brasseur et al., 1998; Hauglustaine et al., 1998). Des analyses de cette étude de sensibilité ont aussi été effectuées pour 15:00 (maximum d'ozone), mais ne sont pas présentées car elles fournissent des résultats similaires.

Tab. 6.1 - Liste des paramètres du modèle perturbés lors de l'étude de sensibilité et bornes d'incertitude adoptées. Une distribution log-normale avec un intervalle de confiance de 68% (1σ) (Beekmann et Derognat, 2003) a été considérée pour tous les paramètres à l'exception des conditions aux limites. D'après Beekmann et Derognat (2003) et Deguillaume et al. (2007)

Paramètres du modèle	Incertitudes (1σ)
Emissions	
Anthropique COV	$\pm 40\%$
Anthropique NO _x	$\pm 40\%$
Biogénique COV	$\pm 50\%$
Constantes de vitesse	
NO + O ₃	$\pm 10\%$
NO ₂ + OH	$\pm 10\%$
NO + HO ₂	$\pm 10\%$
NO + RO ₂	$\pm 30\%$
HO ₂ + HO ₂	$\pm 10\%$
RO ₂ + HO ₂	$\pm 30\%$
RH + OH	$\pm 10\%$
CH ₃ COO ₂ + NO	$\pm 20\%$
CH ₃ COO ₂ + NO ₂	$\pm 20\%$
PAN + M	$\pm 30\%$
Fréquences de photolyse* et rayonnement	
Flux actiniques	$\pm 10\%$
J(O ₃ → 2OH)	$\pm 30\%$
J(NO ₂ → NO + O ₃)	$\pm 20\%$
J(CH ₂ O → CO + 2HO ₂)	$\pm 40\%$
J(CH ₃ COCO → ...)	$\pm 50\%$
J(carbonyle insaturé) → ...	$\pm 40\%$
Paramètres météorologiques	
Hauteur de la couche limite	$\pm 40\%$
Humidité relative	$\pm 20\%$
Taux du mélange vertical	$\pm 50\%$
Autres sources	
Vitesse de dépôt	$\pm 25\%$
Conditions aux limites d'ozone	12 ppb
Conditions aux limites du CO	9 ppb

* L'erreur sur les fréquences de photolyse désigne l'erreur combinée sur la section efficace et le rendement quantique.

6.2.3 Identification des paramètres les plus incertains

Afin d'identifier les paramètres influençant majoritairement les concentrations d'ozone, nous nous intéressons non seulement au biais moyen (moyenne sur le domaine

CHIMERE et sur le mois de juillet 2004) mais aussi à l'erreur RMS associée. En effet, il est très difficile d'évaluer l'influence des paramètres à partir du biais moyen seul. Il est possible de trouver un biais global nul alors que localement il est très important (e.g. pour les émissions de NO_x, on trouve un biais global de 0.23% alors que localement le biais est nettement plus élevé - c.f. analyse détaillée dans la partie suivante).

Comme le montre le tableau 6.1, les paramètres du modèle présentent une incertitude *a priori* sur leur mesure ou sur leur évaluation. L'estimation de telles incertitudes demeure complexe car certains paramètres sont peu connus; le choix des bornes d'incertitude (tableau 6.1) a été guidé par les nombreuses études d'évaluation de l'incertitude trouvées dans la littérature pour les émissions, les constantes de vitesse, les fréquences de photolyse et la vitesse de dépôt (par exemple Beekmann et Derognat, 2003). Cette imprécision peut varier de 10% pour les constantes de réaction et jusqu'à 50% pour les émissions biogéniques. Pour les paramètres météorologiques, les bornes d'incertitude *a priori* ont été dérivées de comparaisons avec les observations météorologiques obtenues dans la région urbaine de Paris lors de la campagne ESQUIF, telles que des mesures lidar utilisées pour la détermination de la hauteur de la couche limite (Beekmann et Derognat, 2003). Les conditions aux limites n'ayant pas été prises en compte dans les travaux de Beekmann et Derognat (2003), nous avons dû estimer l'incertitude *a priori* sur ce paramètre. L'incertitude *a priori* sur les conditions aux limites de l'ozone et du CO obtenue à partir des distributions journalières et mensuelles du modèle LMDZ-INCA (Szopa et al., 2009) de l'année 2004 a été estimée à 12 ppb (c.f. partie 6.1.3) et 9 ppb respectivement.

Afin d'avoir une estimation représentative des paramètres influençant considérablement les concentrations d'ozone, nous avons pris en compte le poids des incertitudes *a priori* de chacun de paramètres dans le calcul du biais et de l'erreur RMS selon les expressions suivantes :

$$RBIAS_{pondérée} = RBIAS \frac{\Delta x}{fact} \text{ et } RRMS_{pondérée} = RRMS \frac{\Delta x}{fact}$$

où Δx correspond à l'incertitude *a priori*, *fact* correspond au facteur de perturbation appliqué ($\pm 20\%$ ou ± 10 ppb) et *RBIAS* et *RRMS* correspondent respectivement au biais relatif et à l'erreur RMS associée.

Les statistiques de l'étude de sensibilité à 10:00, pour des perturbations de +20% (ou +10 ppb) et de -20% (ou -10 ppb) sont données dans les tableaux 6.2 et 6.3, respectivement. Le tableau 6.2, qui présente le biais et l'erreur RMS pondérée à la surface à 10:00, montre que la première source d'incertitude pour l'ozone, si l'on considère l'erreur RMS, sont les conditions aux limites de l'ozone (15.3%), suivies par le taux de dépôt (6.2%), les émissions anthropiques de NO_x (5.7%), la photolyse de NO₂ (5.2%), la hauteur de la couche limite (5%) et les émissions anthropiques et biogéniques de COV (3.6%). Les autres paramètres présentent une erreur RMS moyenne inférieure à 3%. En particulier, on peut remarquer que les constantes de vitesse ont un impact très négligeable sur les concentrations d'ozone (erreur RMS moyenne inférieure à 2%). Pour des perturbations de -20%, nous retrouvons des résultats similaires à ceux obtenus pour des perturbations de +20% (c.f. tableau 6.3). Les résultats obtenus à 3 km d'altitude, non présentés ici, indiquent que les conditions aux limites (O₃) sont le paramètre auquel l'ozone est le plus sensible. L'influence des autres paramètres diminue considérablement avec l'altitude.

Tab. 6.2 - Biais moyen (moyenne sur le domaine et le mois de juillet 2004) à la surface et à 10:00, pondéré par l'incertitude *a priori* de chacun des paramètres et erreur RMS associée (les valeurs sont données en pourcentage). Les résultats sont présentés ici pour des perturbations de +20% (ou +10 ppb selon le paramètre).

Paramètre	$RBIAS_{pondérée}$ (%)	$RRMS_{pondérée}$ (%)
Emissions anthropiques de COV	2.25	3.57
Emissions anthropiques de NO _x	0.47	5.70
Emissions biogéniques de COV	2.40	3.57
Humidité spécifique	-1.35	2.41
Hauteur de la couche limite	3.46	4.98
Taux de mélange vertical	2.18	2.69
Taux de dépôt	-5.48	6.18
NO + O ₃	-1.79	2.17
NO ₂ + OH	-1.42	1.78
NO + HO ₂	0.85	1.04
RO ₂ + NO	0.49	0.62
HO ₂ + HO ₂	-0.08	0.10
RO ₂ + HO ₂	-0.19	0.24
CH ₃ COO ₂ + NO	1.08	1.48
CH ₃ COO ₂ + NO ₂	-1.14	1.56
PAN + M	1.28	1.80
RH + OH	0.73	0.90
flux actiniques	1.83	2.32
J(O ₃ → 2OH)	-1.39	3.08
J(NO ₂ → NO + O ₃)	4.29	5.22
J(CH ₂ O → CO + 2HO ₂)	0.84	1.28
J(CH ₃ COCO → ...)	0.26	0.45
J(carbonyle insaturé) → ...	0	0
Conditions aux limites (O ₃)	13.83	15.30
Conditions aux limites (CO)	0.32	0.38

Pour la mise en œuvre de l'ensemble, nous avons sélectionné les cinq premiers paramètres dont l'erreur RMS moyenne pondérée par l'incertitude *a priori* est la plus importante. Nous avons également pris en compte l'incertitude sur les émissions anthropiques de COV car la perturbation de ce paramètre induit une erreur RMS locale très élevée contrairement à la perturbation des émissions biogéniques de COV qui induit une erreur RMS plus faible (c.f. figure 6.4). La variabilité engendrée par ce sous-ensemble de six paramètres représente environ 90% de la variabilité engendrée par l'ensemble des 25 paramètres, ce qui justifie ce choix.

Tab. 6.3 - Biais moyen (moyenne sur le domaine et le mois de juillet 2004) à la surface et à 10:00, pondéré par l'incertitude *a priori* de chacun des paramètres et erreur RMS associée (les valeurs sont données en pourcentage). Les résultats sont présentés ici pour des perturbations de -20% (ou -10 ppb selon le paramètre).

Paramètre	$RBIAS_{pondérée}$ (%)	$RRMS_{pondérée}$ (%)
Emissions anthropiques de COV	-2.41	3.83
Emissions anthropiques de NO _x	-1.48	6.36
Emissions biogéniques de COV	-2.66	3.96
Humidité spécifique	1.40	2.70
Hauteur de la couche limite	-4.47	6.41
Taux de mélange vertical	-2.93	3.55
Taux de dépôt	6.16	7.02
NO + O ₃	2.29	2.76
NO ₂ + OH	1.77	2.21
NO + HO ₂	-1.04	1.28
RO ₂ + NO	-0.66	0.85
HO ₂ + HO ₂	0.08	0.10
RO ₂ + HO ₂	0.18	0.24
CH ₃ COO ₂ + NO	-1.33	1.83
CH ₃ COO ₂ + NO ₂	1.31	1.80
PAN + M	-1.61	2.27
RH + OH	-0.77	0.98
flux actiniques	-2.09	2.65
J(O ₃ → 2OH)	1.23	3.20
J(NO ₂ → NO + O ₃)	-4.88	5.96
J(CH ₂ O → CO + 2HO ₂)	-0.92	1.40
J(CH ₃ COCO → ...)	-0.29	0.52
J(carbonyle insaturé) → ...	0	0
Conditions aux limites (O ₃)	-13.72	15.22
Conditions aux limites (CO)	-0.32	0.39

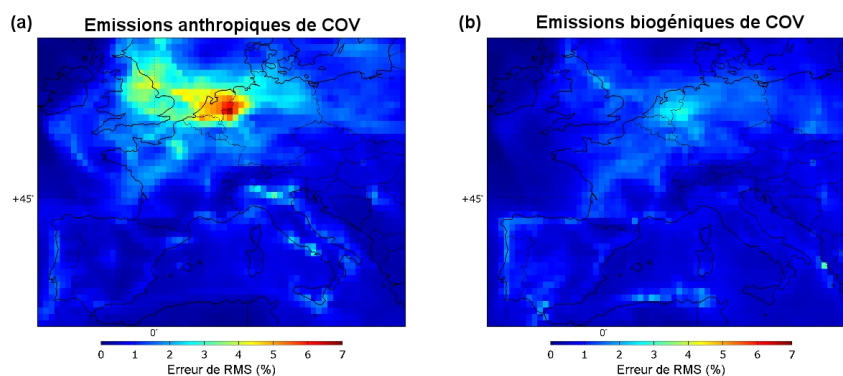


Fig. 6.4 - Distributions de l'erreur RMS calculée à la surface pour une perturbation de 20% d'émission anthropiques de COV (a) et biogéniques de COV (b).

6.2.4 Analyse détaillée de l'étude de sensibilité

Afin de visualiser l'impact des perturbations des paramètres sélectionnés précédemment sur tout le domaine, les distributions spatiales du biais moyenné à 10:00 sur le mois de juillet 2004 sont présentées (en valeur relative). Nous pourrions remarquer que pour des perturbations de signes opposés ($\pm 20\%$ ou ± 10 ppb), les résultats obtenus sont quasiment symétriques, ce qui laisse présumer d'une bonne linéarité de certains processus atmosphériques. Le lecteur est invité à se reporter à l'Annexe D pour avoir un aperçu plus complet des résultats.

Emissions anthropiques de COV

La figure 6.5 illustre le biais relatif moyen à la surface (moyenne sur le mois de juillet 2004 à 10:00) entre une simulation pour laquelle les émissions anthropiques de COV ont été perturbées de $\pm 20\%$ et la simulation de référence. Les zones les plus impactées par ces perturbations sont assez localisées, proches des sources de NO_x et de COV, et donc des zones de fortes concentrations en polluants primaires. Cette zone correspond à une région de réalisation d'un régime chimique sensible aux COV (par exemple Beekmann et Vautard, 2009). Lorsque les émissions de COV sont augmentées, une augmentation des concentrations d'ozone est observée. Le phénomène se trouve inversé lorsque les émissions de COV sont diminuées de 20%. On peut observer que l'effet de seuil rend le modèle non linéaire (c.f. figure 2.9).

Hauteur de la couche limite

La figure 6.6 illustre le biais relatif à la surface, moyenné sur le mois de juillet 2004 à 10:00, entre une simulation pour laquelle la hauteur de la couche limite a été perturbée de $\pm 20\%$ et la simulation de référence. Tout le domaine est influencé par une perturbation de la hauteur de la couche limite. Globalement, on observe des impacts positifs lorsque la hauteur de la couche limite est augmentée alors que les impacts sont négatifs lors d'une diminution de la hauteur de la couche limite, surtout dans les régions à fortes émissions de NO_x , où l'impact de la dilution sur les concentrations du NO et donc sur la titration de l'ozone par le NO se fait le plus sentir. Des valeurs extrêmes du biais de l'ordre de $\pm 12\%$ sont observées, notamment au niveau du Benelux et de l'Angleterre, où les émissions de NO_x sont les plus élevées.

Emissions de NO_x

La figure 6.7 représente le biais relatif à la surface, moyenné sur le mois de juillet 2004 à 10:00, entre une simulation pour laquelle les émissions de NO_x ont été perturbées de $\pm 20\%$ et la simulation de référence. Le domaine est influencé sur des zones très localisées. Les valeurs positives observées sur la figure 6.7 indiquent un régime NO_x -limité alors que les valeurs négatives indiquent un régime de COV-limité (importante concentration de NO_x). Les valeurs extrêmes du biais, de l'ordre de $\pm 16\%$, sont observées aux mêmes endroits que pour la couche limite, indiquant là encore l'effet de la titration de l'ozone. Par ailleurs la sensibilité observée sur la côte du Portugal et sur la Costa del Sol est due à la présence de bateaux ainsi qu'aux émissions de certaines villes côtières comme Lisbonne.

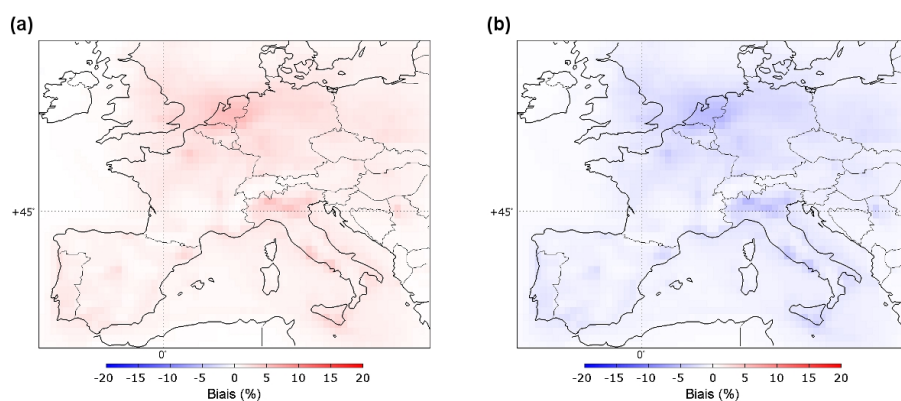


Fig. 6.5 - Distribution du biais relatif calculé à la surface à 10:00 pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) des émissions anthropiques de COV.

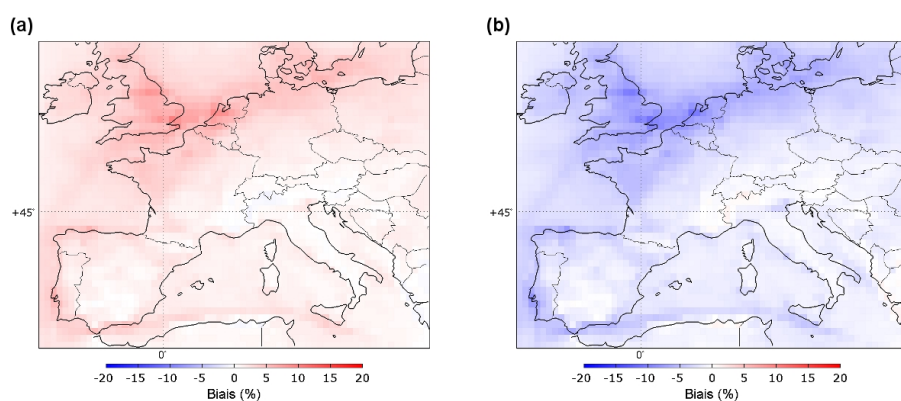


Fig. 6.6 - Distribution du biais relatif calculé à la surface à 10:00 pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) de la hauteur de la couche limite.

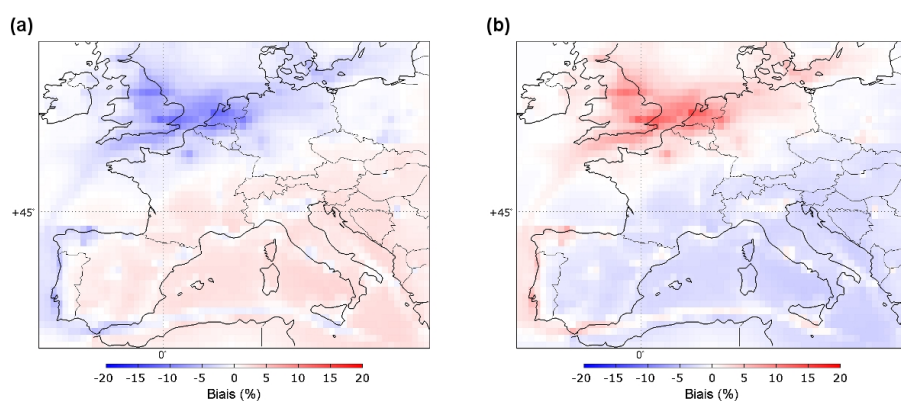


Fig. 6.7 - Distribution du biais relatif calculé à la surface à 10:00 pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) d'émission anthropiques de NO_x.

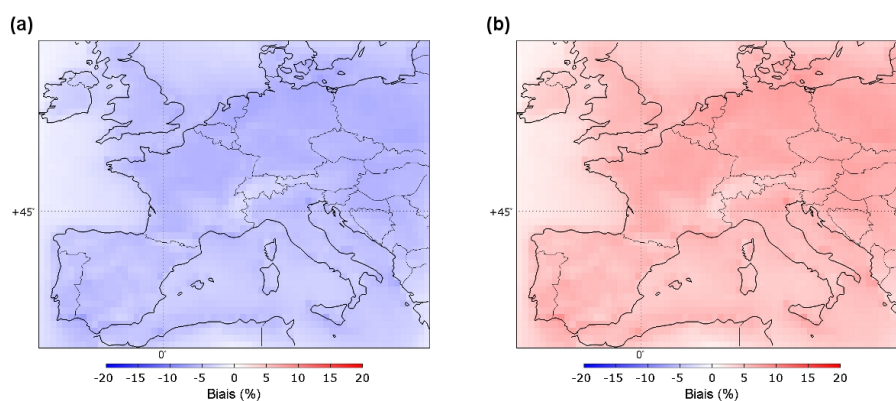


Fig. 6.8 - Distribution du biais relatif calculé à la surface à 10:00 pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) du taux de dépôt.

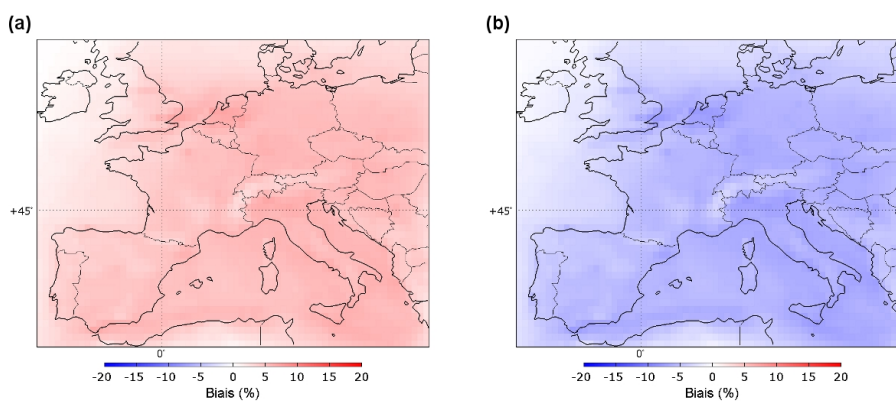


Fig. 6.9 - Distribution du biais relatif calculé à la surface à 10:00 pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) du taux de photolyse de NO_2 .

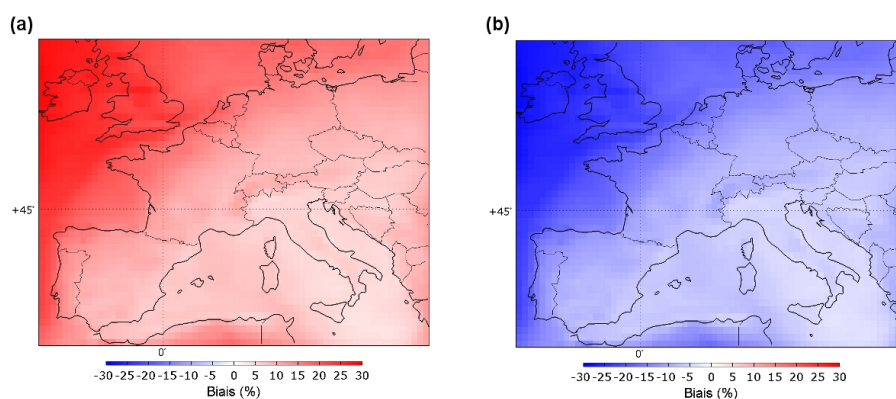


Fig. 6.10 - Distribution du biais relatif calculé à la surface à 10:00 pour une perturbation de +10 ppb (a) et -10 ppb (b) des conditions aux limites de l'ozone.

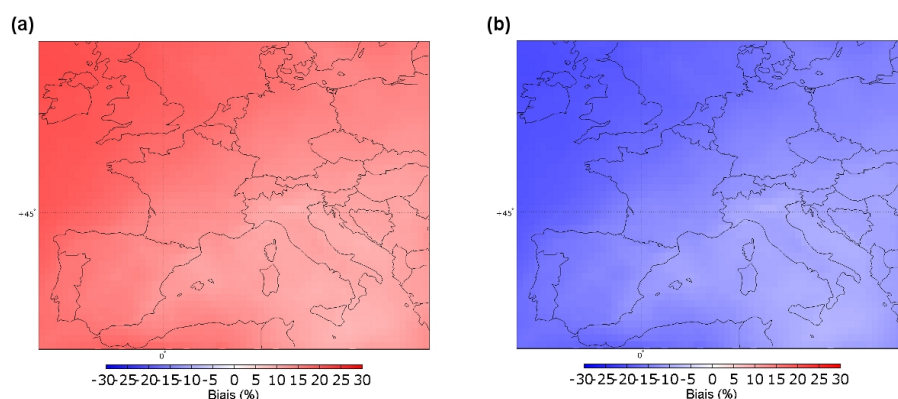


Fig. 6.11 - Distribution du biais relatif calculé à 3 km d'altitude à 10:00 pour une perturbation de +10 ppb (a) et -10 ppb (b) des conditions aux limites de l'ozone.

Taux de dépôt

La figure 6.8 représente le biais relatif à la surface, moyenné sur le mois de juillet 2004 à 10:00, entre une simulation pour laquelle le taux de dépôt a été perturbé de $\pm 20\%$ et la simulation de référence. La perturbation du taux de dépôt présente un impact uniforme (spatialement) sur les concentrations d'ozone de surface. L'impact est accentué sur les surfaces continentales. On observe une diminution d'ozone lorsque le taux de dépôt est augmenté alors que l'ozone augmente lorsque le taux de dépôt est diminué. Ce résultat est attendu puisque le dépôt est un phénomène entraînant une perte au sol d'un constituant (dans notre cas de l'ozone).

Photolyse de NO_2

La figure 6.9 représente le biais relatif à la surface, moyenné sur le mois de juillet 2004 à 10:00, entre une simulation pour laquelle la photolyse du NO_2 a été perturbée de $\pm 20\%$ et la simulation de référence. Une augmentation de la photolyse du NO_2 entraîne une augmentation globale des concentrations d'ozone sur tout le domaine. Ce résultat s'explique par le fait que la réaction de photolyse du NO_2 va produire un atome d'oxygène qui, combiné avec une molécule de dioxygène, entraîne une production d'ozone (c.f. équation 2.1). On observe une fois de plus les valeurs extrêmes au niveau du Benelux, avec les concentrations de NO_x les plus élevées.

Conditions aux limites pour l'ozone

Une perturbation des concentrations d'ozone aux limites du domaine a un impact considérable sur tout le domaine, aussi bien à la surface (figure 6.10) qu'à 3 km (figure 6.11). L'importance de l'incertitude à 3 km est due principalement au fait que le dépôt est nul. Les valeurs extrêmes sont observées au nord-ouest de l'Europe, ce qui est dû à un flux d'ouest probablement plus important au nord et sur les régions continentales. Le dépôt ainsi que des non linéarités chimiques en régime NO_x limité font progressivement disparaître le signal à la surface pour des masses d'air transportées à l'intérieur du domaine considéré.

6.2.5 Conclusion

L'objectif de cette étude de sensibilité a été de déterminer les paramètres du modèle CHIMERE influant le plus sur les concentrations d'ozone, en considérant aussi bien l'impact à la surface que dans la basse troposphère libre (3 km). De très fortes hétérogénéités dans la réponse des concentrations d'ozone simulées aux perturbations imposées aux paramètres d'entrée du modèle ont été mises en évidence. Nous avons utilisé comme critère de choix, l'erreur RMS globale pondérée par l'incertitude *a priori* de chacun des paramètres. Nous notons que l'estimation quantitative de cette incertitude *a priori* est difficile, mais qu'elle permet au moins un classement entre paramètres conduisant à plus ou moins d'incertitude. Les perturbations les plus importantes sont causées par les conditions aux limites de l'ozone, le taux de dépôt, la hauteur de la couche limite, la photolyse du NO₂ et les émissions anthropiques de COV et de NO_x.

6.3 Mise en œuvre de l'ensemble

Dans cette partie, nous présentons la méthodologie appliquée afin de perturber de manière réaliste les paramètres auxquels l'ozone est le plus sensible. Comme on l'a vu dans la section 6.1, la méthode de Monte Carlo permet de perturber les paramètres du modèle aléatoirement. Sur un domaine régional tel que l'Île de France, les erreurs dues à un paramètre sont généralement les mêmes. Ainsi la perturbation appliquée à un paramètre d'entrée est la même sur toute la région. En revanche, sur un domaine continental plus large et plus hétérogène, les erreurs associées à un paramètre donné peuvent varier spatialement et temporellement. Ainsi, nous avons mis en place une méthodologie afin d'estimer des longueurs de décorrélation spatiale et temporelle entre les erreurs pour chacun des paramètres identifiés comme les plus incertains. Il s'agit des distances à partir desquelles les erreurs ne sont plus corrélées. Cette étude nous permettra ensuite d'appliquer des facteurs de perturbation réalistes pour chacun des paramètres.

6.3.1 Estimation des longueurs de décorrélation spatiale des perturbations

Les conditions aux limites

Les conditions chimiques aux limites du modèle (au moins dans sa version "standard") sont apportées par les résultats de modèles globaux (les champs sont interpolés horizontalement et verticalement sur la grille du modèle CHIMERE). Dans la configuration du modèle utilisé dans ce travail, ces conditions aux limites sont des climatologies mensuelles construites à partir de simulations (sur la période 1997-2001) du modèle global de chimie-transport LMDZ-INCA (Hauglustaine et al., 2004; Szopa et al., 2009). Ainsi la concentration des espèces gazeuses est considérée constante pendant un mois spécifique. Afin d'obtenir des facteurs de perturbations réalistes des conditions aux limites, et en l'absence d'un nombre suffisant d'observations aux bords du domaine de simulation, une idée consiste à chercher un proxy (qui se rapproche le plus des observations) telles que les sorties journalières d'un modèle global, ici celles du modèle LMDZ-INCA. La comparaison des valeurs LMDZ-INCA journalières et climatologiques

permet alors d'avoir une estimation de la variabilité spatiale des conditions aux limites et donc de l'erreur commise en prescrivant celle-ci de manière climatologique.

Nous nous sommes dans un premier temps intéressés à l'estimation des structures spatiales (horizontales et verticales) de l'erreur due aux conditions aux limites. Pour cela, il suffit de calculer la variabilité spatiale de l'erreur commise à partir de la différence entre les concentrations d'ozone journalières et mensuelles aux limites du domaine CHIMERE.

La figure 6.12 présente une coupe longitude/altitude ou latitude/altitude de la variabilité de l'erreur due aux conditions aux limites pour les quatre côtés du domaine, moyennée à 10:00 sur le mois de juillet 2004. Clairement, on observe, pour les quatre cas, que la variabilité est très importante au-dessus de 10 km. A ces altitudes, elle est un peu plus faible pour le côté Sud du domaine. Dans la basse troposphère, on observe une variabilité plus élevée pour les côtés Nord et Est et plus faible pour les côtés Sud et Ouest. Sur un même côté du domaine, la variabilité peut aussi être importante, comme illustré pour le côté Est : la variabilité est plus élevée au nord de 45°N, dans la région soumise au flux de sortie d'Europe de l'Ouest. Notons que la figure fait apparaître la résolution verticale limitée (~2 km) de LMDZ-INCA dans la haute troposphère.

La figure 6.13 présente la répartition verticale de la variabilité des erreurs, moyennée pour chaque côté du domaine (Nord, Sud, Ouest et Est). La dispersion de l'erreur varie entre 3.5 ppb et 8 ppb à la surface, devient constante dans la troposphère libre jusqu'à 9 km (~4 ppb) et puis augmente considérablement jusqu'à 70 ppb vers la tropopause.

Ce qui nous intéresse maintenant, c'est de savoir comment une erreur est corrélée à l'autre. A cette fin, nous avons analysé les structures spatiales des corrélations entre les erreurs dues à l'utilisation des conditions aux limites climatologiques. Nous avons calculé les corrélations verticales et horizontales selon les équations 6.9, 6.10 et 6.11.

- Corrélation verticale sur le côté k du domaine (Nord, Sud, Ouest ou Est) :

$$cor(c_{kl}(i), c_{kl}(j)) = \frac{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_{nkl}(i) - \overline{c_{kl}}(i))(c_{nkl}(j) - \overline{c_{kl}}(j))}{\sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_{nkl}(i) - \overline{c_{kl}}(i))^2} \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_{nkl}(j) - \overline{c_{kl}}(j))^2}} \quad (6.9)$$

$$cor(c_k(i), c_k(j)) = \frac{1}{L} \sum_{l=1}^L cor(c_{kl}(i), c_{kl}(j)) \quad (6.10)$$

où i et j sont les indices correspondant à une altitude donnée, l l'indice correspondant à une latitude (ou longitude) donnée du côté k du domaine, N le nombre de jours et L le nombre de mailles du côté k du domaine.

L'équation 6.9 correspond à la corrélation verticale en chaque point d'un côté du domaine CHIMERE alors que l'équation 6.10 représente la corrélation verticale moyennée sur un côté du domaine.

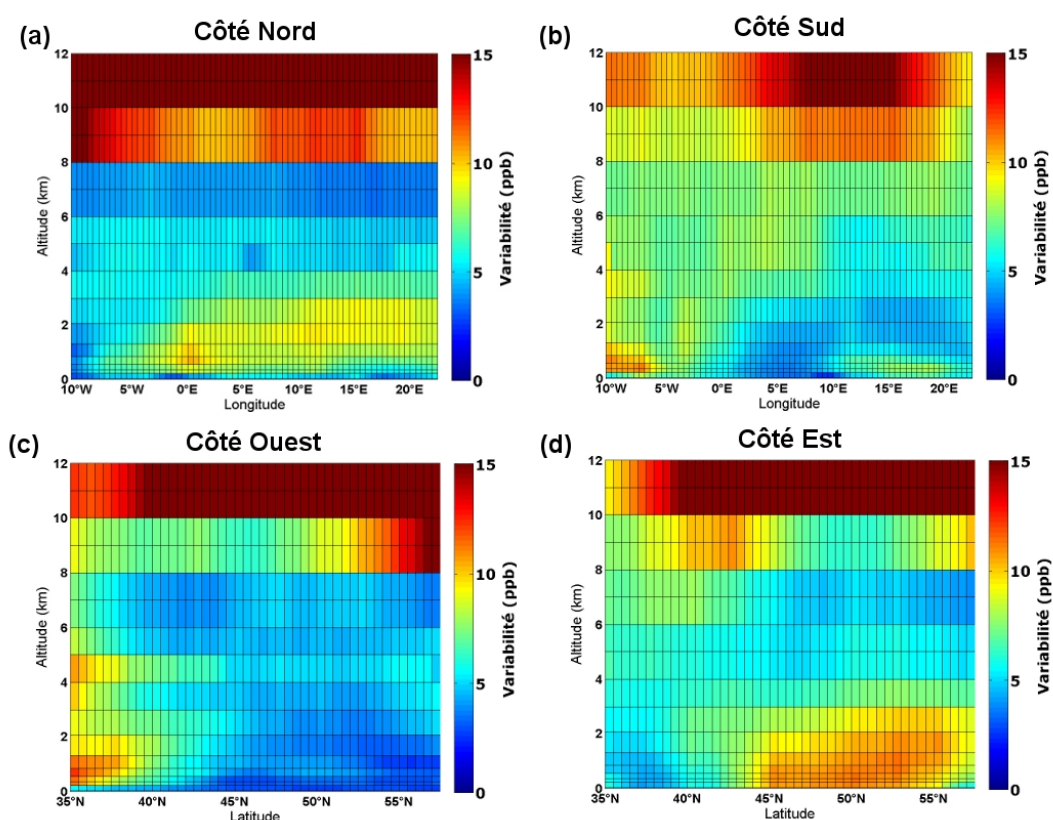


Fig. 6.12 - Coupes longitude/altitude et latitude/altitude de l'écart-type de l'erreur de modèle due aux conditions aux limites, à partir des sorties LMDZ-INCA journalières (2004) et mensuelles, obtenue pour les quatre côtés du domaine.

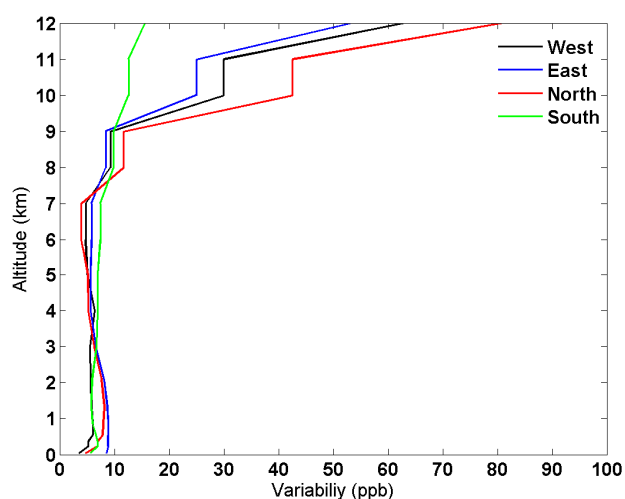


Fig. 6.13 - Distribution verticale de l'écart-type de l'erreur de modèle due aux conditions aux limites, à partir des sorties LMDZ-INCA journalières (2004) et mensuelles, obtenue pour les quatre côtés du domaine.

- Corrélation horizontale sur le côté k du domaine, à l'altitude i :

$$\text{cov}(c_{ki}(l), c_{ki}(m)) = \frac{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N ((c_{nki}(l) - \overline{c_{ki}}(l))(c_{nki}(m) - \overline{c_{ki}}(m)))}{\sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_{nki}(l) - \overline{c_{ki}}(l))^2} \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_{nki}(m) - \overline{c_{ki}}(m))^2}} \quad (6.11)$$

où l et m sont les indices correspondant à une longitude ou une latitude donnée du côté k du domaine et N le nombre de jours.

La figure 6.14 représente les distributions verticales des corrélations entre les erreurs moyennées sur le côté Nord (a), Sud (b), Ouest (c) et Est (d) du domaine CHIMERE et calculées selon l'équation 6.10. Les résultats pour le côté Est montrent que les niveaux verticaux sont fortement corrélés dans la basse troposphère, notamment entre la surface et le sommet de la couche limite (~ 3 km) alors qu'ils le sont beaucoup moins pour les trois autres côtés. En particulier, on observe au niveau des côtés Nord et Sud une corrélation beaucoup plus faible entre la surface et les couches situées au-dessus. Pour le côté Est, la corrélation des basses couches reste proche de 1 jusqu'à 2 km, ce qui peut s'expliquer par la formation d'une couche limite continentale élevée. Par ailleurs, on observe une décorrélation entre la basse et la haute troposphère (côté Est), voire une anticorrélation (côté Nord et Ouest).

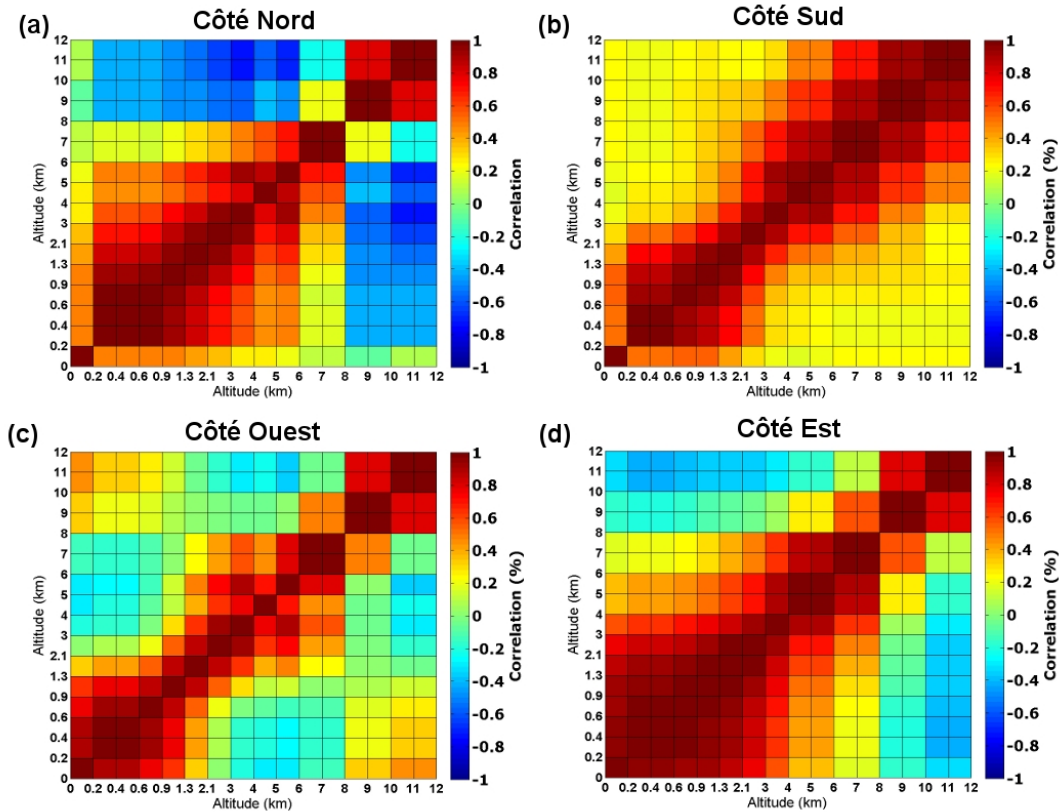


Fig. 6.14 - Matrice de corrélation verticale de l'erreur due aux conditions aux limites, calculée à partir des sorties LMDZ-INCA journalières (2004) et mensuelles, et moyennée sur le côté Nord (a), Sud (b), Ouest (c) et Est (d) du domaine du modèle.

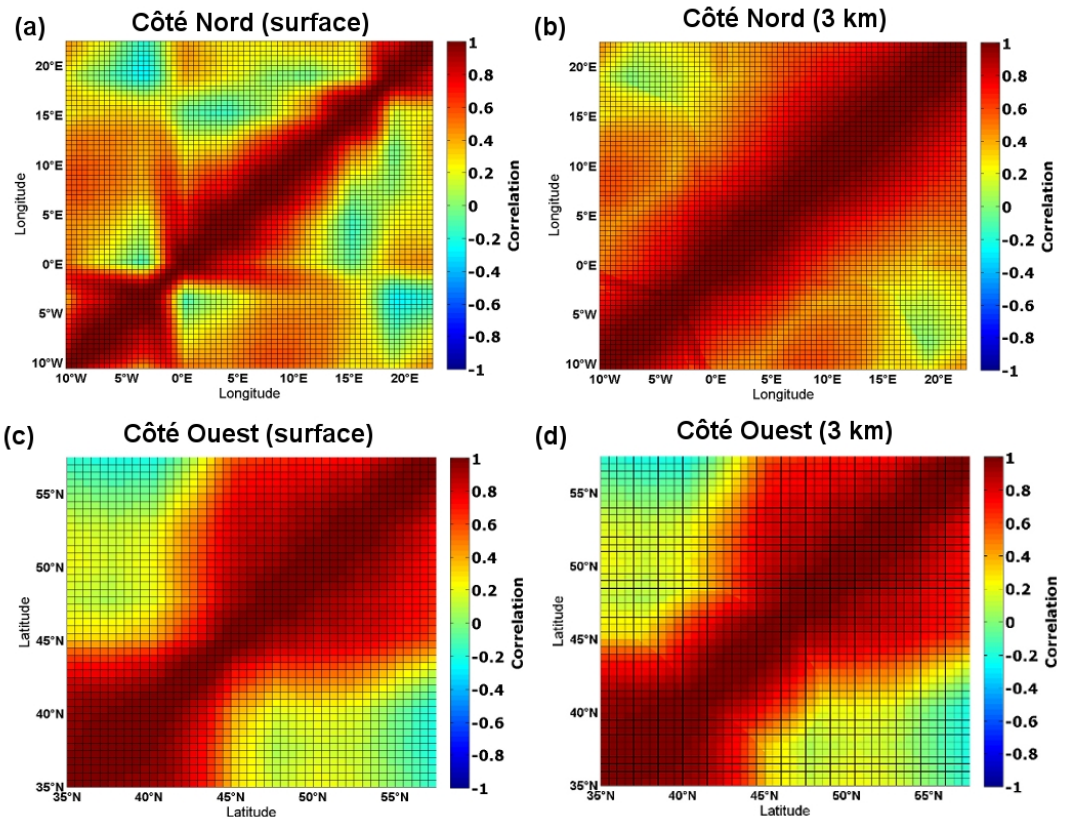


Fig. 6.15 - Matrice de corrélation horizontale de l'erreur due aux conditions aux limites, calculée à partir des sorties LMDZ-INCA journalières (2004) et mensuelles, obtenue pour le côté Nord à la surface (a) et à 3 km (b) et pour le côté Ouest à la surface (c) et à 3 km (d).

La figure 6.15 illustre les distributions horizontales des corrélations entre les erreurs obtenues à la surface et à 3 km pour le côté Nord et le côté Ouest selon l'équation 6.11. Pour le côté Ouest et à la surface (figure 6.15c), les erreurs situées au sud et au nord de 45°N sont assez fortement corrélées entre elles, mais la décorrélation entre le sud et le nord est complète. Toujours pour le côté Ouest, mais à 3 km d'altitude, la corrélation apparaît plus régulière (s'étendant sur 3° avec des corrélations supérieures à 80%) mais elle est plus faible. Si l'on s'intéresse au côté Nord à 3 km d'altitude, la corrélation est régulière et plus importante que pour le côté Ouest (on trouve une corrélation s'étendant sur 5°). En revanche à la surface, on ne retrouve pas du tout les mêmes corrélations que pour le côté Ouest.

Cette section a permis de décrire les structures spatiales de la variabilité de l'erreur et des corrélations entre les erreurs pour les conditions aux limites. Afin de perturber de façon réaliste les conditions aux limites, nous appliquons une méthode simple et directe : au lieu d'utiliser des fichiers climatologiques comme conditions aux limites du domaine CHIMERE, nous utilisons la différence entre les fichiers LMDZ-INCA journaliers et climatologiques; cette méthode permet ainsi de garder la structure complète de la covariance de l'erreur.

Les émissions anthropiques de COV et de NO_x

La détermination de la structure spatiale de l'erreur due aux émissions nécessiterait, dans l'idéal, la construction d'un modèle d'erreur à partir d'un modèle d'émissions qui regroupe des données d'activité et des facteurs d'émission par activité, et leurs erreurs associées. Or, un tel modèle d'erreur n'existe pas dans la littérature et son développement n'est pas un objectif du présent travail. Ainsi, afin d'estimer au mieux les structures spatiales de l'erreur dues aux émissions et donc des longueurs de décorrélation spatiales, nous avons procédé à un raisonnement fortement simplifié. Nous avons choisi un concept discontinu de régions d'émissions, à l'intérieur desquelles la corrélation est 1, et à l'extérieur desquelles elle est 0 (ce qui permet un codage plus facile). Ce concept fait donc le compromis entre erreurs systématiques et invariantes sur tout le domaine (par exemple mauvaise estimation de facteurs d'activités) et d'autres spatialement variables (estimation de l'activité régionale).

En nous inspirant du travail de Hanea et al., (2004), nous avons défini dix régions d'émissions différentes : Espagne-Portugal, Italie, Scandinavie-Danemark, Allemagne-Autriche-Suisse, République Tchèque-Pologne-Russie, Pays-Bas-Belgique, Royaume-Uni-Irlande, Grèce-Hongrie-Roumanie-Bulgarie-Albanie, Maghreb, France. La taille médiane de ces régions est d'environ 480 000 km², ce qui revient à une longueur de décorrélation spatiale de 700 km environ. Ainsi, une corrélation de 1 sur la grande région Espagne-Portugal par exemple signifie qu'une perturbation appliquée à un endroit de cette région sera la même dans toute la région. En revanche l'erreur (ou la perturbation) sera complètement décorrélée des erreurs (ou perturbations) dans les régions voisines.

L'incertitude *a priori* sur les émissions a été fixée à 40 % pour toutes les régions (c.f. tableau 6.1). La perturbation des émissions est proportionnelle à cette incertitude avec un coefficient de proportionnalité aléatoire, identique pour chaque grande région définie ci-dessus mais différent d'une région à l'autre.

Hauteur de la couche limite

Pour la hauteur de la couche limite, l'idée de départ a consisté à supposer que l'erreur est corrélée au sein d'un même système synoptique mais décorrélée entre un système anticyclonique et dépressionnaire. Encore une fois, il est difficile de vérifier cette interprétation. Dans ce cas, cela impliquerait des longueurs de corrélation de plusieurs centaines de kilomètres qui seraient variables en fonction des conditions météorologiques. Nous avons fait le choix (pragmatique) d'utiliser les régions définies précédemment pour les émissions anthropiques et qui présentent des longueurs de corrélation similaires. Ainsi, les longueurs de corrélation seront traitées de la même manière pour la hauteur de la couche limite et pour les émissions.

Comme les émissions, l'incertitude *a priori* sur la hauteur de la couche de mélange a été fixée à 40 % pour toutes les régions et les perturbations sont réalisées de la même manière.

Taux de dépôt

Le taux de dépôt, issu d'un modèle de trois résistances (turbulente, laminaire et au niveau de la plante) dépend surtout du type de surface (en effet le dépôt sur une surface nue ou bien sur l'eau est très faible alors que le dépôt sur une surface végétalisée est plus

important). Dans ce contexte, nous avons choisi de fixer des longueurs de décorrélation selon le type de surface (9 types de surface sont définis dans CHIMERE, c.f. chapitre 2) ainsi que selon 3 régions qui sont fonction de la latitude (nord, tempéré et méditerranéenne). En effet une forêt située en région méditerranéenne n'aura pas le même type de végétation qu'une forêt située en zone tempérée. Le dépôt sera alors différent, et l'erreur décorrélée.

L'incertitude *a priori* sur le taux de dépôt a été fixée à 25 % pour toutes les régions (c.f. tableau 6.1). Ici encore les perturbations ont été appliquées de la même façon que pour les émissions à la différence près que les régions définies ne sont pas les mêmes.

Taux de photolyse de NO₂

L'étude de sensibilité a montré que la perturbation du flux actinique a presque le même effet que la perturbation du taux de photolyse de NO₂. Nous avons donc choisi de perturber non pas le taux de photolyse de NO₂ mais de reporter des erreurs sur celui du flux actinique, ce qui englobe donc tous les taux de photolyse. En plus, nous tenons compte de l'effet de l'incertitude sur la couverture nuageuse.

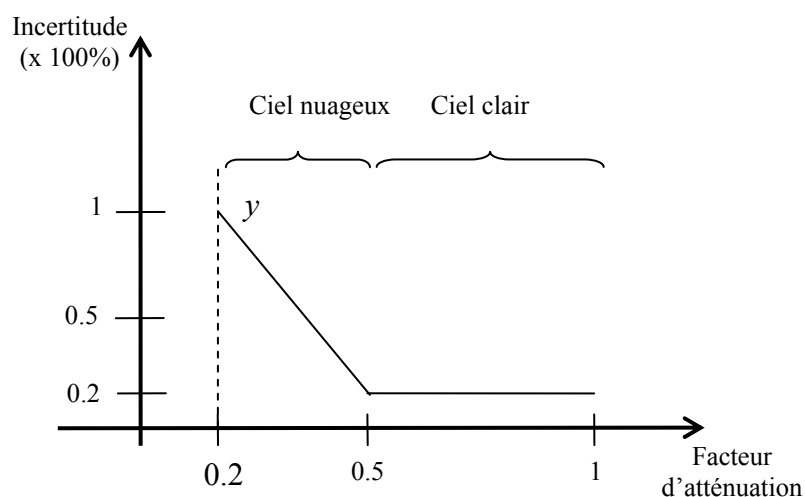


Fig. 6.16 - Evolution de l'incertitude sur les flux actiniques en fonction d'un facteur d'atténuation dû à la présence de nuage.

Contrairement aux autres paramètres, nous n'avons pas défini de longueur de décorrélation spatiale pour le flux actinique mais nous avons défini des incertitudes dépendant des conditions nuageuses. En effet, en cas de ciel clair ou avec une couverture nuageuse faible (on considère ce cas pour un facteur d'atténuation compris entre 1 et 0.5, c'est-à-dire pour un flux actinique entre 50% et 100%), l'erreur sur le flux actinique est très faible (négligeable) alors qu'en cas de ciel nuageux (facteur d'atténuation inférieur à 0.5), l'erreur est beaucoup plus importante en raison de l'incertitude sur l'épaisseur optique des nuages.

En cas de ciel clair, l'erreur sur le taux de photolyse, en particulier de NO₂, est plus importante que l'erreur sur les nuages. Ainsi l'incertitude sur le flux actinique correspond à l'incertitude *a priori* du taux de photolyse de NO₂ (20%). En cas de ciel nuageux, nous

avons considéré que l'incertitude est une fonction du facteur d'atténuation, comme l'illustre la figure 6.16. Connaissant le facteur d'atténuation minimal calculé à l'intérieur de CHIMERE (0.2), l'incertitude est donnée par la droite y dans l'intervalle [0.2 0.5]. L'incertitude maximale peut atteindre une valeur de 1, ce qui permet de considérer le cas où l'on a la possibilité d'absence de nuage alors qu'il y en a dans le modèle de référence.

6.3.2 Estimation des longueurs de décorrélation temporelle des perturbations

En plus des corrélations spatiales d'erreur, nous devons spécifier leur longueur de (dé)corrélation dans le temps. Comme pour le choix des corrélations spatiales des incertitudes, le choix des corrélations temporelles est un problème complexe et son traitement restera approximatif (dans le cadre de ce travail).

Considérant que les structures des champs d'ozone aux bords du domaine CHIMERE dans les simulations de LMDZ-INCA sont visibles pendant un jour ou deux, nous avons appliqué une décorrélation temporelle de 24 h. Ainsi des conditions aux limites différentes sont choisies pour chaque jour de manière indépendante. Ceci revient à considérer que l'erreur sur les conditions aux limites est différente d'un jour à l'autre.

Comme nous l'avons mentionné précédemment, l'incertitude sur les émissions vient à la fois des facteurs d'activité dont le biais peut être systématique sur de longues périodes de temps, et des quantités d'activités, dont l'erreur peut changer d'un jour à l'autre. Nous avons choisi d'appliquer une longueur de décorrélation temporelle "médiane" de 3 jours. Pour les hauteurs de la couche limite, nous avons appliqué une longueur de corrélation temporelle de 3 jours qui correspond à une échelle de temps synoptique. Pour le flux actinique, nous avons considéré une longueur de décorrélation temporelle d'un jour, tenant compte de la variabilité beaucoup plus rapide de la couverture nuageuse. La même longueur a été appliquée pour le taux de dépôt.

Les différentes longueurs de corrélation spatiale et temporelle appliquées à chacun des paramètres d'entrée au modèle sont données dans le tableau 6.4.

Afin de simuler l'évolution temporelle des erreurs, nous allons à chaque pas de temps produire une perturbation \mathbf{q}_k , combinaison de la perturbation \mathbf{q}_{k-1} du pas de temps précédent, et d'une nouvelle perturbation \mathbf{w}_k avec une moyenne de 0 et un écart-type correspondant à l'incertitude pour chaque paramètre, définie dans le tableau 6.1 (Evensen et al., 2003) :

$$\mathbf{q}_k = \alpha \mathbf{q}_{k-1} + \sqrt{1 - \alpha^2} \mathbf{w}_k \quad (6.12)$$

où α est un facteur qui dépend du pas de temps utilisé Δt et d'une longueur de décorrélation temporelle spécifiée τ , définie par la relation suivante : $\alpha = 1 - \frac{\Delta t}{\tau}$ avec

$\Delta t \leq \tau$. Notons que cette méthode est indépendante des longueurs de décorrélation spatiale, mais s'y rajoute.

Tab. 6.4 - Tableau récapitulatif indiquant les paramètres les plus incertains ainsi que les critères choisis pour l'estimation de longueurs de décorrélation spatiale et temporelle pour les perturbations.

Paramètres	Longueur de décorrélation spatiale	Longueur de décorrélation temporelle
Conditions aux limites de l'ozone	Utilisation de sorties journalières LMDZ-INCA	24 h
Emissions anthropiques de COV		
Emissions anthropiques de NO _x	11 grands domaines définis par 700 km de longueur environ	72 h
Hauteur de la couche limite		72 h
Taux de dépôt	27 régions définies selon le type de surface (9) et la latitude (3 bandes de latitudes définies)	24 h
Flux actinique	Conditions nuageuses	24 h

6.3.3 Outils d'évaluation de l'ensemble

Dans cette section, nous décrivons les différents outils utilisés pour l'évaluation de la qualité de l'ensemble.

L'ensemble est évalué d'une part selon la dimension verticale, ce qui nous intéresse principalement dans le cadre de l'assimilation de données satellitaires telles que les données IASI. Il est d'autre part évalué à la surface, ce qui est intéressant pour l'assimilation de données de surface. L'évaluation de l'ensemble est réalisée à 10:00 (proche de l'heure locale de passage de IASI le matin) ainsi qu'à 15:00 (maximum d'ozone journalier). On rappelle que IASI passe également au-dessus de l'Europe vers 22:00, cependant l'étude sur le contraste thermique (c.f. chapitre 4) ayant montré que l'apport de IASI est faible lors de l'orbite du soir, les mesures du soir ne semblent pas utiles pour l'assimilation. C'est pourquoi les résultats obtenus à 22:00 ne sont pas présentés.

Outils statistiques

Définissons tout d'abord la variable qui nous intéressera lors de l'assimilation de données : la covariance d'erreur du modèle calculée à partir de l'ensemble (c.f. section 6.1.1). Dans la dimension verticale, elle s'écrit, pour un jour et une heure donnée :

$$\text{cov}(c_{kl}(i), c_{kl}(j)) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_{nkl}(i) - \overline{c_{kl}}(i)) (c_{nkl}(j) - \overline{c_{kl}}(j)) \quad (6.13)$$

où i et j sont les indices correspondant à deux altitudes données, k et l les indices correspondant respectivement à une longitude et une latitude données, N le nombre de

membres (30 dans notre cas), c_n la concentration d'ozone simulée par le membre n . La covariance d'erreur à la surface s'écrit, quant à elle :

$$cov(c(k), c(l)) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_n(k) - \overline{c(k)}) (c_n(l) - \overline{c(l)}) \quad (6.14)$$

Cette variable est cependant difficile à analyser. Il est donc nécessaire d'utiliser d'autres outils statistiques pour l'évaluation de l'ensemble. Ces outils ont été présentés brièvement dans la section 6.1.3. L'incertitude calculée à partir de l'ensemble peut d'abord être évaluée classiquement à l'aide du diagramme de Talagrand. On rappelle toutefois que ce diagramme n'est pas une mesure d'exactitude. Une méthode alternative consiste à examiner la variabilité de l'incertitude (ou l'écart-type correspondant à la diagonale de la matrice de covariance) ainsi que les corrélations entre les erreurs, ce qui permet de quantifier les résultats, contrairement au diagramme de Talagrand qui est qualitatif. Enfin l'évolution spatio-temporelle de la dispersion de l'ensemble peut être analysée à l'aide du diagramme de dispersion-erreur. Ce sont ces trois outils que nous avons utilisés pour l'évaluation de l'ensemble.

Observations utilisées pour l'évaluation

Afin d'évaluer l'ensemble, nous avons considéré une covariance d'erreur du modèle de référence calculée à partir de la différence entre les observations et la simulation de référence, supposée être l'erreur "vraie" du modèle. Pour alléger le texte, on l'appellera dans la suite covariance d'erreur (écart-type, corrélation, etc) de référence. Elle s'exprime dans la dimension verticale et à la surface respectivement par :

$$cov_{kl}(diff(i), diff(j)) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_n(i) - c_{ref,n}(i)) (c_n(j) - c_{ref,n}(j)) \quad (6.15)$$

$$cov_{kl}(diff(k), diff(l)) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (c_n(k) - c_{ref,n}(k)) (c_n(l) - c_{ref,n}(l)) \quad (6.16)$$

où i et j sont les indices correspondant aux altitudes, k et l les indices correspondant respectivement à une latitude et longitude, N le nombre de jours, c_n la concentration d'ozone observée le jour n et $c_{ref,n}$ la concentration d'ozone simulée par le modèle de référence le jour n .

Nous disposons de deux types d'observation pour l'été 2004 permettant d'évaluer l'ensemble aussi bien dans la dimension verticale qu'à la surface :

- les mesures de profils d'ozone fournies par le programme MOZAIC;
- les mesures de surface fournies par la base de données AIRBASE.

Seules les données MOZAIC disponibles au-dessus de Vienne, Paris et Francfort sont considérées (les données au-dessus de Munich n'étant pas assez nombreuses). D'autre part, ces données ont été regroupées en 4 groupes horaires (G1=00:00-05:00, G2=06:00-11:00, G3=12:00-17:00 et G4=18:00-23:00) en raison du manque de données disponibles. Seuls les groupes G2 et G3 sont analysés. Enfin les profils MOZAIC ont été moyennés dans des couches de 1 km d'épaisseur de la surface à 10 km. Les niveaux d'altitude correspondent au milieu de chaque couche. La covariance d'erreur verticale de référence a été calculée par Ung et Forêt (communication personnelle, 2007).

Les mesures AIRBASE sont disponibles sous forme de concentration horaire pour trois types de station (fond, industriel, trafic) et trois zones (rural, périurbaine et urbaine). Seules les stations de fond et rurales ont été prises en compte dans ce travail en raison de la non représentativité des stations urbaines et périurbaines, de type industriel ou trafic pour une maille de 0.5° du modèle.

6.4 Evaluation de la première configuration de l'ensemble

La simulation de référence a été réalisée du 1^{er} juillet au 31 juillet 2004. Les paramètres d'entrée perturbés sont les conditions aux limites d'ozone, le taux de dépôt, la hauteur de la couche limite, les émissions anthropiques de NO_x et de COV ainsi que le flux actinique. Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, chaque champ est perturbé selon une loi log-normale (Evensen et al., 2003), à l'exception des conditions aux limites, pour lesquelles nous avons choisi de prendre un fichier journalier par jour simulé.

Dans la littérature, les ensembles sont généralement construits à partir d'une dizaine de membres, voire moins (~ 10). Cependant avec un ensemble de dix membres, il y a le risque inhérent de ne pas bien représenter l'incertitude. Par ailleurs, les expériences d'assimilation basée sur l'EnKF ont montré qu'avec quelques dizaines de membres, les résultats obtenus sont satisfaisants et qu'une augmentation du nombre de membres n'apportait pas de gain significatif au regard des efforts consentis. Dans ce travail, nous avons choisi d'aller jusqu'à 30 membres afin d'obtenir une matrice de covariance d'erreur du modèle la plus fiable possible.

Avant de présenter les résultats de l'évaluation, quelques illustrations de l'ensemble à la surface et en altitude sont présentées.

Afin d'analyser la répartition spatiale de la dispersion de l'ensemble, la figure 6.17 illustre la moyenne temporelle, à 15:00, de la distribution spatiale de l'écart-type (dans chaque maille du modèle) à la surface ainsi qu'en altitude. En surface, on observe une hétérogénéité, probablement due à l'influence des conditions aux limites sur le bord ouest du domaine mais également aux émissions au niveau de la région de la Ruhr et à l'est de celle-ci. De manière générale, on constate une augmentation de la dispersion de l'ensemble aux endroits de fortes émissions ainsi qu'au niveau des côtes en Europe du Sud. On peut même observer la titration de l'ozone par le NO (dégagé par les bateaux) au niveau de la Méditerranée.

La distribution spatiale de la dispersion de l'ensemble est très hétérogène selon l'altitude. En effet, à 2 km et 5 km, la dispersion de l'ensemble est maximale au sud-ouest du domaine alors qu'à 9 km elle est la moins élevée. Ceci s'explique par l'influence des conditions aux limites, non seulement sur les bords latéraux du domaine mais également à son sommet. De façon générale, ces conditions aux limites sont plus variables dans la haute troposphère, à proximité de la tropopause.

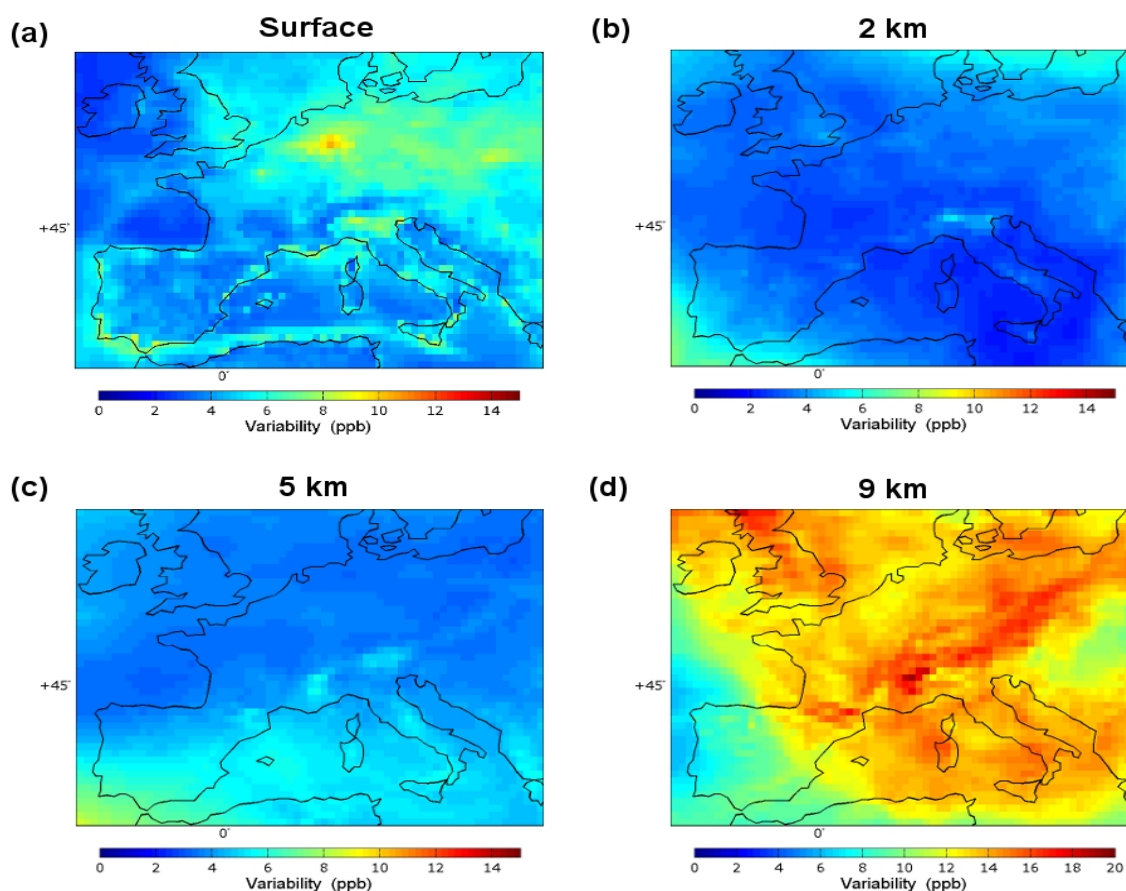


Fig. 6.17 - Répartition spatiale de l'incertitude absolue (moyenne temporelle de l'écart-type des concentrations d'ozone simulées dans chaque cellule sur le mois de juillet 2004) à 15:00, à la surface (a), 2 km (b), 5 km (c) et 9 km (d). Les altitudes ont été calculées par rapport à une pression de surface de 1013 hPa. Afin d'améliorer la lisibilité de la figure (d), l'échelle de couleur est différente.

L'évolution temporelle des concentrations d'ozone simulées à la surface par les 30 membres de l'ensemble pour une maille donnée de CHIMERE au-dessus de la plaine du Pô est illustrée sur la figure 6.18. Pour ce cas particulier, les concentrations d'ozone à 15:00 varient entre 47 et 55 ppb.

L'incertitude des concentrations d'ozone simulées peut être assez faible lors d'un jour venteux et nuageux mais beaucoup plus importante lors de conditions anticycloniques stagnantes en raison de la sensibilité à de nombreux paramètres tels que les émissions ou encore les conditions aux limites de l'ozone. La question que nous adressons ici est de savoir si l'ensemble est capable de reproduire l'incertitude du modèle, ce que nous présentons dans la suite.

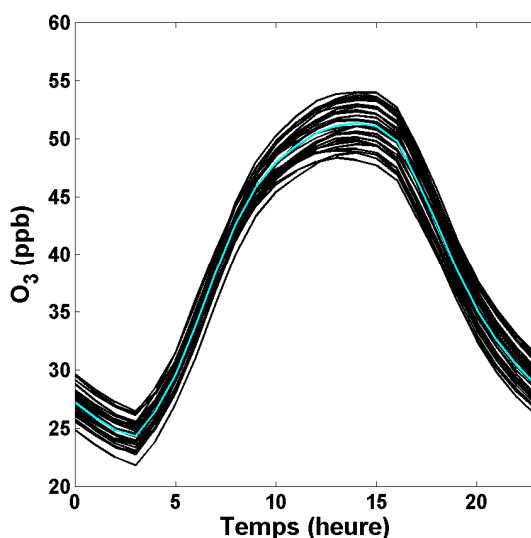


Fig. 6.18 - Profils journaliers moyens des concentrations d'ozone de surface simulées par les 30 membres de l'ensemble au-dessus de la plaine du Pô. Pour chaque heure de la journée, la valeur de chaque profil simulé est la moyenne des concentrations sur tous les jours du mois de juillet 2004.

6.4.1 Evaluation sur la verticale

Analyse de l'écart-type des erreurs

Pour analyser la répartition verticale de l'incertitude obtenue à partir de l'ensemble et de la "référence", la figure 6.19 reporte la moyenne mensuelle à 10:00 et à 15:00 de la distribution verticale de l'écart-type. La courbe bleue correspond à la dispersion de l'ensemble (appelé *ensemble 1*) alors que la courbe noire correspond à la variabilité de l'erreur calculée à partir de la différence entre les observations et la simulation de référence, qu'on considère comme l'erreur de référence. Pour les trois stations, l'écart-type de l'erreur simulée par l'*ensemble 1* est plus faible que celui de l'erreur de référence (par rapport aux observations) et ce, d'un facteur variant de 2 à 3. Ce résultat se trouve notamment accentué dans la région de la tropopause. Dans la troposphère libre, l'écart-type de l'erreur varie de 4 ppb environ pour l'ensemble et de 12 ppb pour la référence. Ce résultat était attendu car les champs journaliers d'un modèle global sous-estiment la variabilité. Des résultats similaires ont été trouvés entre les sorties journalières du modèle MOZART et les observations MOZAIC (Zyryanov et al., communication personnelle, 2009). En réalité, l'évolution de l'incertitude avec l'altitude et son augmentation aux altitudes proches de la tropopause est bien reproduite. Cette figure montre également que les erreurs sont plus faibles l'après-midi (voir courbe noire représentant l'incertitude du modèle calculée à partir de la référence). Dans la suite, nous reviendrons sur la courbe rouge correspondant à la dispersion d'une deuxième configuration d'ensemble.

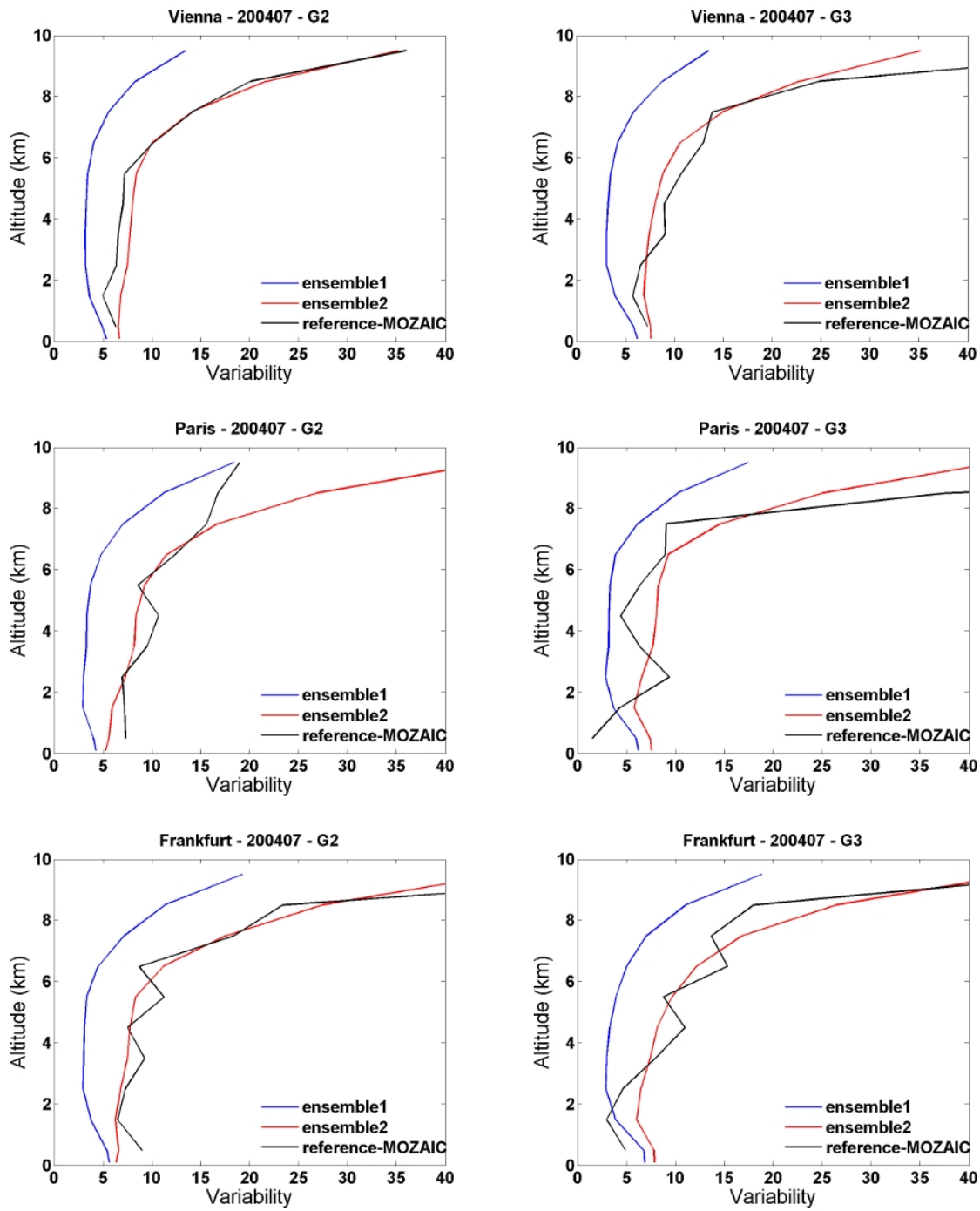


Fig. 6.19 - Distribution verticale de l'écart-type de l'erreur de modèle calculée à partir de la référence (noir), de l'ensemble initial (bleu) et de l'ensemble initial avec ajustement des conditions aux limites (rouge) (voir section 6.4.3) moyennée pour le mois de juillet 2004 pour 3 stations MOZAIC à 10:00 (gauche) et à 15:00 (droite).

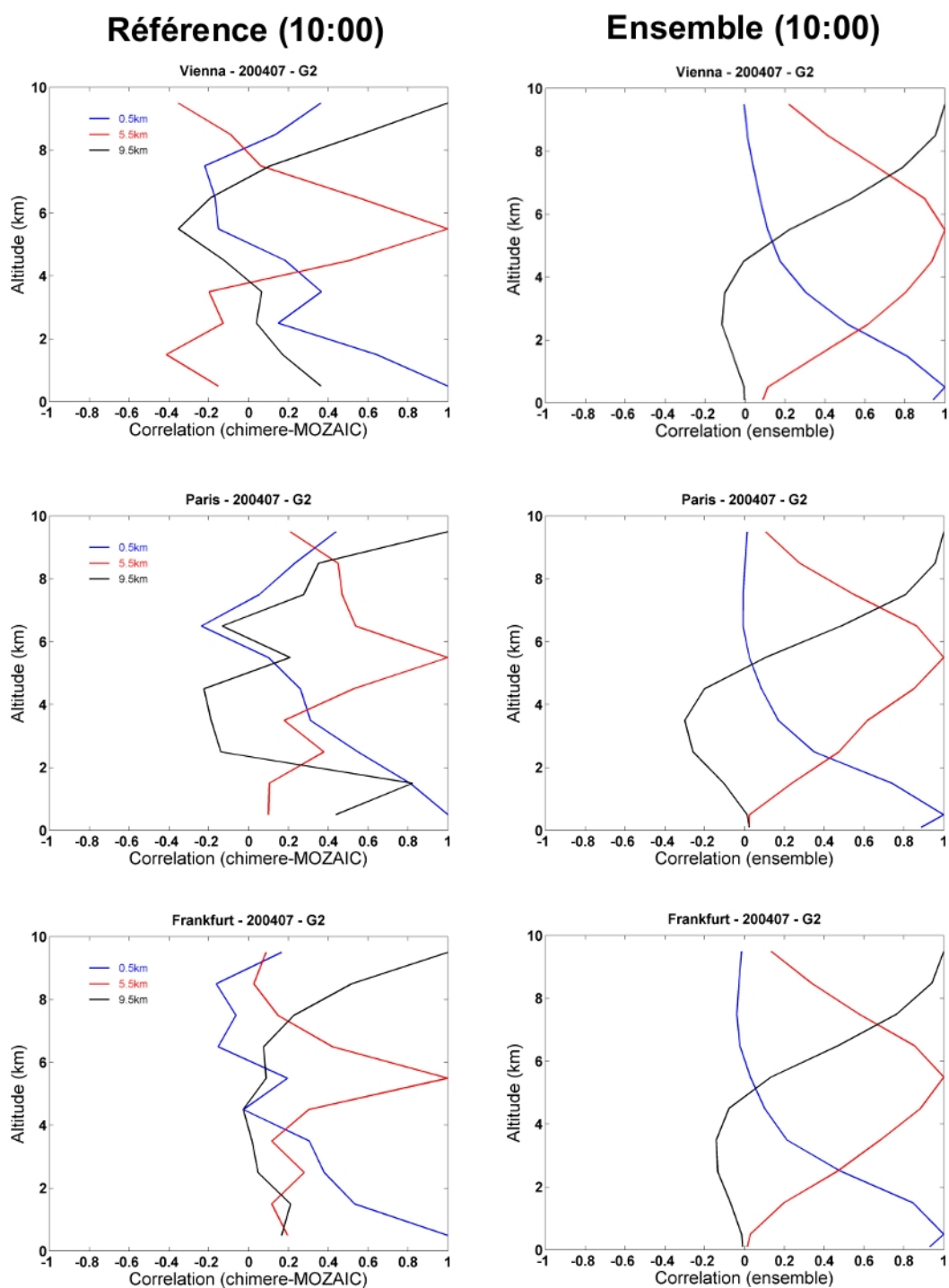


Fig. 6.20 - Distribution verticale des corrélations entre les erreurs du modèle calculées à partir de la référence (gauche) et de l'ensemble (droite) moyennée pour le mois de juillet 2004 pour 3 stations MOZAIC pour le groupe horaire G2 (06:00-11:00).

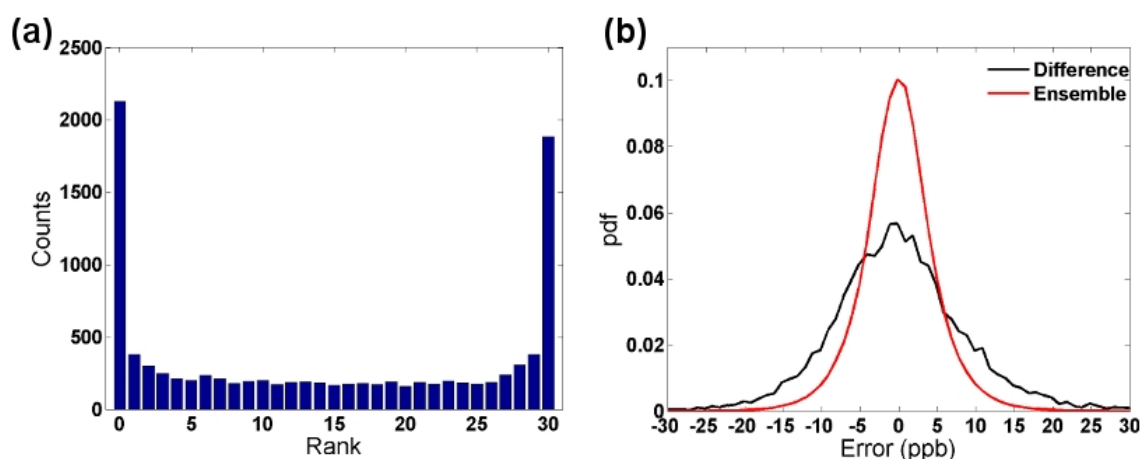


Fig. 6.21 - (a) Histogramme de rangs des concentrations d'ozone à 15:00 parmi les 30 membres de l'ensemble, toutes stations et jours de juillet 2004 assemblés; (b) Distributions de probabilité obtenues à partir de la référence (noir) (différence entre observations et simulation de référence) et l'ensemble (rouge).

Analyse des corrélations entre les erreurs

La figure 6.20 illustre la moyenne mensuelle de la distribution verticale des corrélations entre les erreurs calculées à partir de l'ensemble et de la référence. Les résultats étant similaires pour chaque groupe horaire, seules les corrélations calculées pour la période 06:00-11:00 sont présentées ici. Pour plus de lisibilité, nous présentons les corrélations seulement pour certains niveaux d'altitude de référence (0.5 km en bleu, 5.5 km en rouge et 9.5 km en noir). A première vue, les corrélations obtenues à partir de l'ensemble et de la "référence" présentent une allure similaire. En effet, entre la couche limite et la troposphère libre la décorrélation est assez forte (c.f. courbes en bleu). Egalement entre la troposphère libre et la tropopause (courbes en magenta), une décorrélation est constatée. Cependant, on s'aperçoit que les erreurs calculées à partir de l'ensemble sont trop corrélées par rapport aux erreurs calculées à partir de la référence. En effet, en dérivant des longueurs de corrélation (ce paramètre indique en particulier comment l'information d'une mesure satellitaire à une altitude donnée pourrait se propager aux autres niveaux d'altitude), les résultats montrent que les longueurs de corrélation sont plus importantes pour l'ensemble. En effet si l'on prend l'exemple de la courbe en rouge (cas de Vienne pour la période 06:00-11:00 - G2), la distance entre une corrélation de 1 et de 0.5 est d'environ 1 km pour la référence alors qu'elle est de 3 km pour l'ensemble. Ce qui signifie que l'information fournie à 5.5 km se propage à des distances plus élevées dans le cas de l'ensemble.

6.4.2 Evaluation à la surface

Histogramme de rangs

La figure 6.21a présente l'histogramme de rangs pour le mois de juillet 2004 à 10:00. La figure montre que l'histogramme est en forme de "U" avec une zone assez plate au milieu, ce qui met en évidence une sous-estimation de la dispersion de l'ensemble. Notons que l'interprétation de la différence entre les classes 0 et 1 et entre les classes $n-1$ et n (où n

est le nombre de membres) est difficile car ces différences seraient à l'évidence plus faibles si on regroupait les classes 1 et 2 et $n-1$ et $n-2$. Néanmoins, le résultat d'un diagramme en forme de "U" reste valable pour les classes allant de 1 à $n-1$. La figure 6.21b illustre les distributions de probabilités obtenues à partir de l'ensemble (différences entre chaque membre de l'ensemble et l'ensemble moyen) et de la référence (différence entre observations et simulation de référence). On note que les différences sont ici débiaisées c'est-à-dire que la différence moyenne est retirée de la différence obtenue à chaque point de grille et chaque jour. Cette figure permet simplement de vérifier que les distributions sont gaussiennes.

Afin d'analyser la répartition spatiale de l'incertitude obtenue à partir de l'ensemble, la moyenne mensuelle de l'écart-type absolu (moyenne sur le mois de juillet) de l'ensemble et de la référence a été examinée à 10:00 et à 15:00.

Evaluation de l'erreur de représentativité des mesures

Les mesures AIRBASE, comme d'autres, sont entachées d'une erreur de mesure et ne sont pas forcément représentatives pour une maille donnée du modèle. Donc pour comparer la dispersion de l'ensemble et celle de la différence entre modèle et observations de façon réaliste, le bruit sur les mesures doit être pris en compte et dans l'idéal soustrait de la différence. On peut dire ici que ce bruit est largement dominé par la représentativité d'une mesure ponctuelle pour l'ensemble d'une maille CHIMERE (d'une résolution de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$) et qu'il peut donc être calculé pour les mailles comportant plusieurs mesures. Ainsi pour chaque maille du domaine comportant au moins deux mesures, nous avons calculé la variance débiaisée des erreurs de mesure à 10:00 et à 15:00. Considérant que la moyenne est le meilleur estimateur du bruit de mesure, nous avons moyenné les variances obtenues sur le domaine CHIMERE et sur le mois de juillet. Pour un jour, une heure et une maille donnés, le bruit de mesure a été calculé selon l'expression suivante :

$$var(o_{ij}) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \left[(o_{ijn} - \overline{o_{ij}}) - (\overline{o_{ijn}} - \overline{o_{ij}}) \right]^2 \quad (6.17)$$

où i est l'indice d'une maille du modèle comportant N mesures ($N > 1$), o la concentration d'ozone mesurée et j un jour donné.

Le tableau 6.5 indique les différents résultats obtenus sur le bruit de mesure, à 10:00 et à 15:00. On constate déjà qu'il y a très peu de mailles englobant plus de 2 mesures simultanées (cela représente environ 0.5% du nombre total de mailles). Que ce soit à 10:00 ou à 15:00, le bruit de mesure varie très peu, il est compris entre 2 et 6 ppb environ. Donc malgré le faible nombre de mailles contenant des mesures simultanées, il est possible de caractériser ce bruit de manière représentative.

La variance de référence (i.e. de la différence entre simulation de référence et observations) corrigée du bruit sur les mesures, $var_corrige(diff_i)$ est calculée selon l'expression suivante, en considérant l'erreur de la mesure et l'erreur du modèle comme non-corrélées :

$$var_corrige(diff_i) = var(diff_i) - var(o) \quad (6.18)$$

où i correspond à l'indice d'une maille CHIMERE, $var(diff_i)$ est la variance de référence et $var(o)$ est le bruit moyen de mesure AIRBASE.

Tab. 6.5 - Résultats obtenus pour l'estimation du bruit de mesure.

	10:00	15:00
Nombre de mailles avec des mesures simultanées	15	14
Ecart-type minimal	3.0 ppb	1.6 ppb
Ecart-type maximal	5.5 ppb	6.0 ppb
Ecart-type moyen	4.3 ppb	4.8 ppb

Analyse de l'écart-type des erreurs

En moyenne, l'incertitude simulée par l'ensemble à 15:00 est de 5.82 ppb, valeur proche de celle trouvée à partir de la distribution de probabilité (c.f. figure 6.21b). L'incertitude de référence est de 8.88 ppb, valeur plus importante que celle simulée par l'ensemble, résultat que l'on retrouve également avec l'histogramme de rangs. Si l'on considère l'écart-type de l'erreur calculé à partir de la référence corrigée du bruit de mesure, ce qui permet de rendre les comparaisons significatives, on trouve un écart-type moyen de 7.24 ppb, valeur se rapprochant de celui simulé par l'ensemble mais restant nettement plus forte.

La figure 6.22 reporte la répartition spatiale de l'incertitude (moyenne temporelle de l'écart-type absolu sur le mois de juillet) déduite de l'ensemble (noté *ensemble 1*) et de la référence à 10:00 et à 15:00, uniquement pour les mailles comportant des observations.

A 15:00, la dispersion de l'ensemble varie de 2 ppb à 7 ppb et présente un gradient spatial assez fort entre le Sud-Ouest et le Nord-Est. La structure spatiale de l'erreur de référence est moins cohérente. En effet les structures spatiales étant moins prononcées, il est difficile de trouver des corrélations entre l'erreur de modélisation simulée à partir de l'ensemble et celle de référence calculée à partir de la différence entre observations et simulation de référence. Les structures spatiales de l'erreur calculée à partir de la référence corrigée du bruit de mesure restent inchangées (ceci est dû au fait que l'on enlève un bruit constant) et ne sont donc pas présentées ici.

A 10:00, on retrouve le même type de résultat, avec une incertitude moyenne simulée par l'ensemble de 5.16 ppb, une incertitude moyenne de 8.62 ppb pour la référence et de 7.51 ppb pour la référence corrigée du bruit de mesure.

Les résultats montrent ici que l'ensemble sous estime la variabilité globale de l'incertitude en comparaison avec les observations.

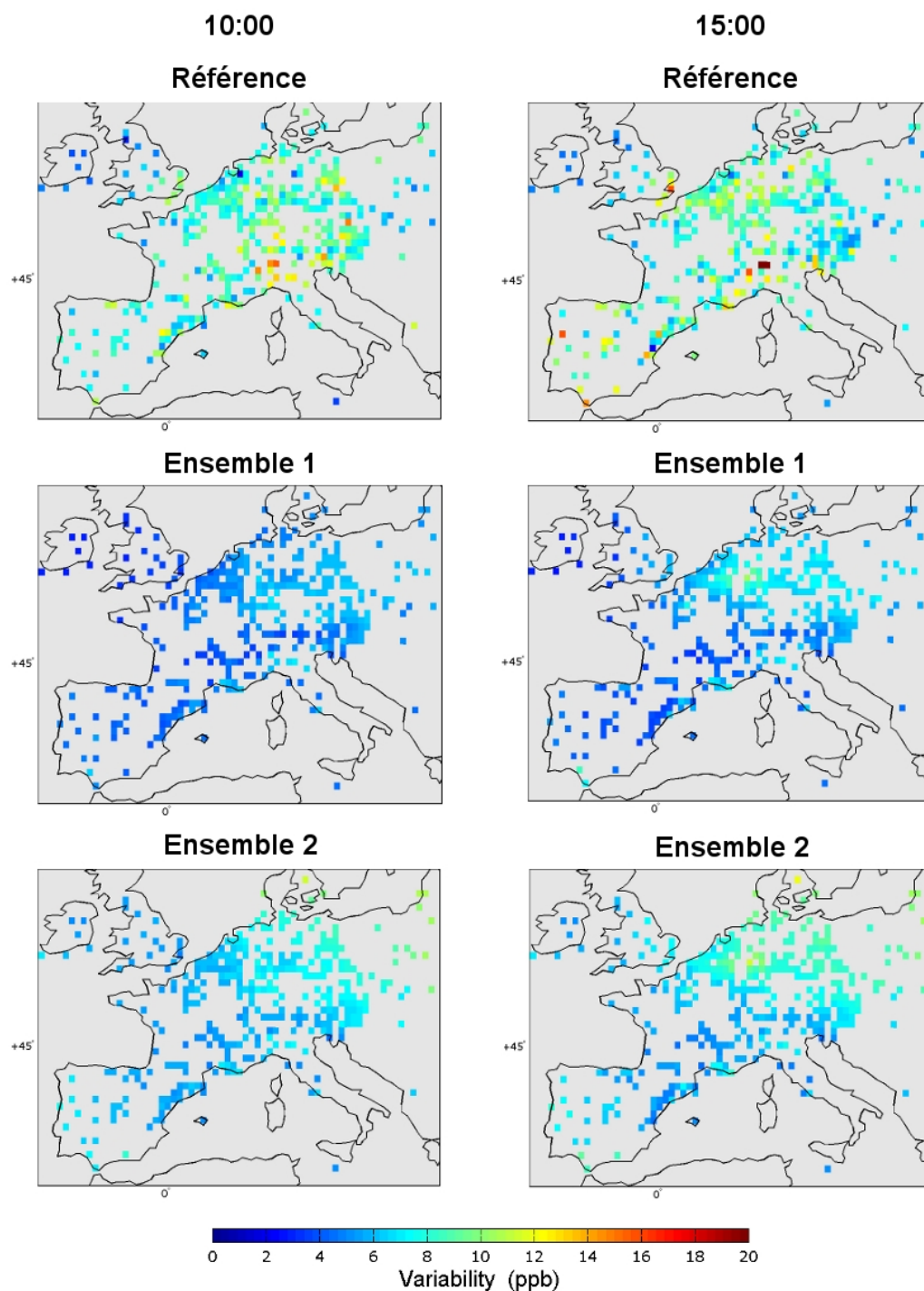


Fig. 6.22 - Répartition spatiale de l'incertitude du modèle (moyenne temporelle de l'écart-type) obtenue à 10:00 (gauche) et à 15:00 (droite) à partir de la référence, de l'ensemble initial (noté *ensemble 1*) et de l'ensemble après ajustement de l'incertitude des conditions aux limites (noté *ensemble 2*, voir section 6.5). Notons que la distribution de la dispersion de l'*ensemble 1* à 15:00 correspond à celle de la figure 6.17a (surface), avec la différence que seules les valeurs pour des mailles avec des observations sont montrées et les échelles de couleurs sont différentes.

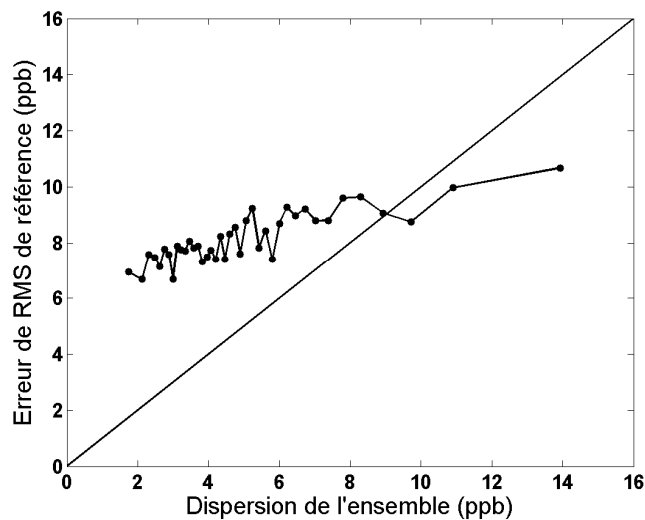


Fig. 6.23 - Diagramme de dispersion-erreur. Erreur RMS de référence par rapport à la dispersion de l'ensemble définie comme l'écart-type des 30 valeurs simulées à 15:00. Les valeurs ont été moyennées dans des quantiles (bins) de taille variable mais peuplés par le même nombre constant de valeurs (40 réalisations).

Diagramme de dispersion-erreur

La figure 6.23 illustre un diagramme de dispersion-erreur spatio-temporel où l'erreur représentée par la différence entre simulation de référence et observations est tracée par rapport à la dispersion de l'ensemble définie comme l'écart-type de l'ensemble. Afin d'éviter le bruit statistique, les résultats sont moyennés dans des quantiles (bins) de taille variable mais peuplés par le même nombre constant de valeurs (moyenne sur 40 réalisations). Si l'incertitude était parfaitement simulée par l'ensemble, les points devraient être le long de la droite de pente 1. Au contraire, si la dispersion de l'ensemble n'est pas corrélée avec l'erreur RMS de la "référence", la courbe devrait être horizontale. La figure 6.23 montre que l'incertitude simulée par l'ensemble est sous-estimée. On observe par ailleurs que lorsque la dispersion de l'ensemble est plus importante (autour de 12-14 ppb), l'erreur RMS de référence est plus petite que la dispersion de l'ensemble. Cela signifie que lorsque les membres sont fortement en désaccord, l'incertitude est surestimée. L'inverse est également vrai : lorsque la dispersion de l'ensemble est petite (2-4 ppb), l'erreur RMS de référence est beaucoup plus importante que la dispersion de l'ensemble. Ainsi une partie de la dispersion de l'ensemble n'est pas due à l'incertitude réelle, mais aux différences entre les membres.

Analyse des corrélations entre les erreurs

Les corrélations entre les erreurs à la surface ont ensuite été analysées à 10:00 et à 15:00. La figure 6.24 présente les corrélations entre les erreurs calculées à partir de l'ensemble et à partir de la référence, à 10:00 et à 15:00, en fonction de la distance. Les résultats montrent clairement que l'ensemble surestime la corrélation entre les erreurs.

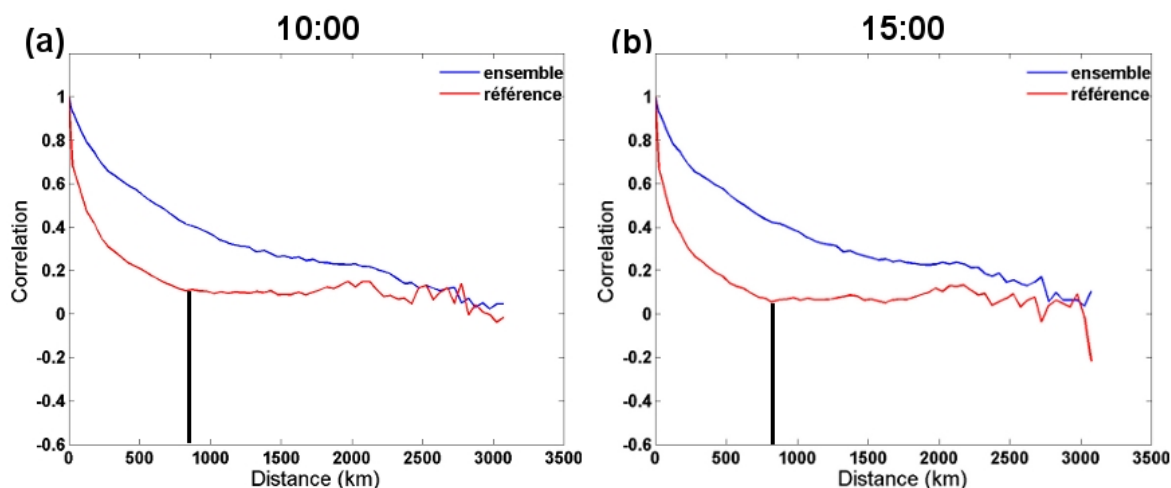


Fig. 6.24 - Corrélation entre les erreurs du modèle calculée à partir de l'ensemble et de la référence en fonction de la distance à 10:00 (a) et à 15:00 (b). Pour des distances plus grandes, on retrouve moins de paires de sites, ce qui explique le bruit observé sur les deux figures (à partir de 2400 km).

Cette figure montre par ailleurs qu'une longueur de décorrélation spatiale peut être dérivée à partir de la référence. En effet, la courbe rouge se stabilise vers 800 km environ (voir la position du trait vertical noir), ce qui indique qu'au-delà de cette distance (appelée portée dans un variogramme), la corrélation entre deux erreurs est nulle. Les corrélations sont alors indépendantes de la distance à partir de cette valeur. En revanche, pour l'ensemble, la portée est plus longue (plus que 2000 km), mais ne peut pas être déterminée avec certitude.

Notons aussi les différences de corrélation pour de très faibles distances. Elles s'expliquent probablement par deux effets : d'abord la résolution limitée du modèle de 0.5° qui crée des champs plus lisses pour l'ensemble à des faibles distances, ensuite le bruit de mesure qui peut partiellement décorréler les séries temporelles des observations même pour des sites de mesures proches. En effet, de la même manière que pour l'écart-type (ou variabilité), les corrélations entre les erreurs de référence devraient être corrigées du bruit de mesure. En pratique, ceci s'est révélé impossible, puisque manifestement pour des mailles avec de faibles différences entre modèle et mesures, le bruit moyen des mesures déterminé précédemment représentait une surestimation menant à des corrélations supérieures à 1. Nous n'avons donc pas appliqué le bruit de mesure aux corrélations.

6.4.3 Conclusion intermédiaire

Les résultats de l'évaluation de cet ensemble initial ont montré que la variabilité moyenne de l'erreur du modèle est sous-estimée à la fois pour l'ozone proche de la surface mais aussi et surtout pour l'ozone dans la troposphère libre. De plus, les corrélations horizontale et verticale de l'erreur du modèle sont surestimées. Le diagramme de dispersion-erreur a montré que la variabilité spatio-temporelle de l'erreur est également sous-estimée par l'ensemble.

Dans le cadre de l'assimilation de données satellitaires, il est essentiel que l'ensemble reproduise correctement la variabilité de l'erreur dans la troposphère libre. Une idée a été d'ajuster les incertitudes des conditions aux limites qui sont introduites dans le modèle puisque c'est le paramètre qui influe le plus sur les concentrations d'ozone dans cette région de l'atmosphère. Cet ajustement est effectué tout simplement en calculant le rapport entre les 2 profils verticaux d'écart-type (*ensemble 1* et référence, c.f. figure 6.19) et ce, pour chaque aéroport du programme MOZAIC présentant suffisamment de données. Chaque rapport est ensuite moyenné entre 2.5 et 5.5 km, intervalle d'altitude correspondant à la troposphère libre et dans lequel la variabilité reste à peu près constante. Le facteur moyen obtenu est de 2.5. Ainsi une deuxième configuration d'ensemble a été réalisée en appliquant ce facteur de correction lors de la perturbation des conditions aux limites de l'ozone. Cette démarche est tout à fait justifiable puisqu'on se base sur une approche semi-empirique, c'est-à-dire qu'une démarche physique est dans un premier temps utilisée, puis ajustée avec les observations. L'évaluation de ce deuxième ensemble est présentée dans la partie suivante.

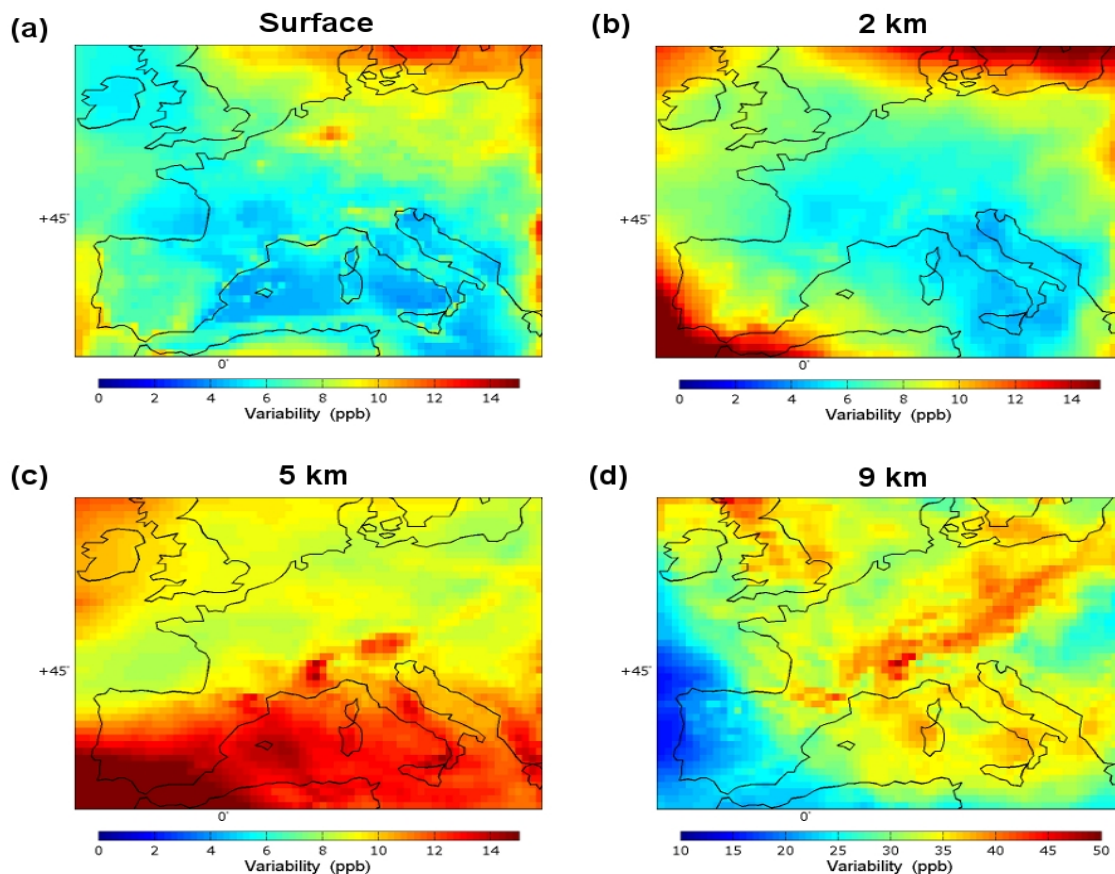


Fig. 6.25 - Répartition spatiale de l'incertitude absolue (moyenne temporelle de l'écart-type dans chaque cellule) à 15:00 pour la deuxième configuration de l'ensemble (avec ajustement de l'incertitude sur les conditions aux limites), à la surface (a), 2 km (b), 5 km (c) et 9 km (d). Les altitudes ont été calculées par rapport à une pression de surface de 1013 hPa. Afin d'améliorer la lisibilité de la figure (d), l'échelle de couleur est différente.

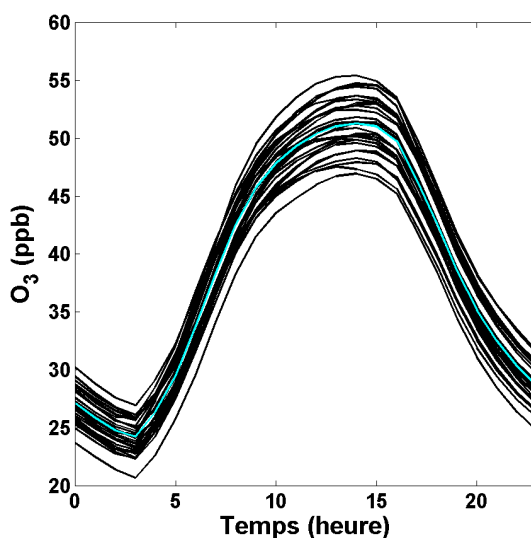


Fig. 6.26 - Profils journaliers moyens des concentrations d'ozone de surface simulées par les 30 membres de la deuxième configuration de l'ensemble (après ajustement de l'incertitude sur les conditions aux limites) au-dessus de la plaine du Pô (même coordonnées que la figure 6.18). Pour chaque heure de la journée, la valeur de chaque profil simulé est la moyenne des concentrations sur tous les jours du mois de juillet.

6.5 Evaluation d'une deuxième configuration de l'ensemble

Nous introduisons cette section par quelques illustrations de la deuxième configuration de l'ensemble (incluant l'ajustement de l'incertitude sur les conditions aux limites). Ensuite, nous procédons, d'une part, à une réévaluation de l'ensemble "ajusté" pour le mois de juillet 2004 et d'autre part, à une extension de l'évaluation de cette deuxième configuration à l'été 2004.

La figure 6.25 illustre la répartition spatiale de la dispersion de l'ensemble (seconde configuration) à la surface et en altitude pour le mois de juillet 2004. Les mêmes structures que pour l'ensemble initial sont observées avec une variabilité plus importante en altitude, résultat attendu en raison de l'ajustement de l'incertitude sur les conditions aux limites. En surface, la dispersion de l'ensemble "ajusté" est également augmentée par rapport à la première configuration mais moins qu'en altitude. Pour des raisons de lisibilité, les échelles de couleurs des distributions à 9 km ont été doublées par rapport à la figure 6.17.

L'évolution temporelle des concentrations d'ozone simulées à la surface par les 30 membres de l'ensemble pour une maille donnée de CHIMERE (même coordonnée que la figure 6.18) est illustrée sur la figure 6.26. Pour ce cas particulier, les concentrations d'ozone simulées varient entre 45 et 55 ppb.

6.5.1 Evaluation sur la verticale

Analyse de l'écart-type de l'erreur et des corrélations entre les erreurs

La répartition verticale de l'incertitude obtenue à partir de l'ensemble "ajusté" est illustrée sur la figure 6.19 de la section 6.4.1 (courbe rouge). Comme attendu, l'ajustement de l'incertitude sur les conditions aux limites permet une nette amélioration de la variabilité de l'erreur, à l'exception de Paris à 15:00 (G2) où l'on observe un écart-type beaucoup plus important au-dessus de 8 km (différence variant de 10 ppb à 30 ppb). La distribution verticale des corrélations entre les erreurs calculées à partir de cet ensemble "ajusté" est exactement la même que celle obtenue à partir de l'ensemble initial (figure 6.20) et n'est donc pas présentée. Des longueurs de décorrélation plus grandes que celles de la référence sont observées.

6.5.2 Evaluation à la surface

Histogramme de rangs

La figure 6.27a illustre le diagramme de rangs pour le mois de juillet 2004 à 15:00. Comme pour l'ensemble initial, on retrouve un diagramme en forme de "U" avec toutefois les deux barres extrêmes un peu moins haute que pour l'ensemble initial. Ce résultat montre que l'incertitude du modèle simulée par cet ensemble "ajusté" est toujours sous-estimée mais moins que celle simulée par l'ensemble initial. La figure 6.27b illustre les distributions de probabilité des différences obtenues à partir de l'ensemble et de la référence. On observe encore une fois des distributions normales avec une moyenne de 0.

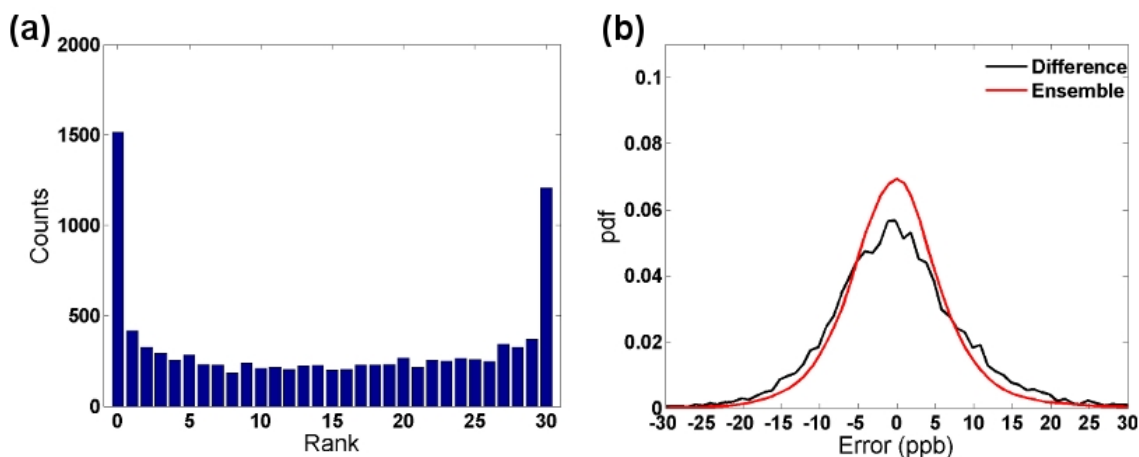


Fig. 6.27 - (a) Histogramme de rangs des concentrations d'ozone à 15:00 parmi les 30 membres de l'ensemble "ajusté", toutes les stations et jours de juillet 2004 étant assemblés; (b) Distributions de probabilité obtenues à partir de la référence (noir) (différence entre observations et simulation de référence) et de l'ensemble "ajusté" (rouge).

Tab. 6.6 - Ecart-type moyen (moyenne sur le mois de juillet 2004 et sur l'ensemble du domaine) obtenu à 10:00 et à 15:00 pour la référence (avec et sans correction du bruit de mesure), l'ensemble initial et l'ensemble "ajusté". Les valeurs sont données en ppb.

	10:00	15:00
Référence	8.62	8.88
Référence corrigée du bruit de mesure	7.51	7.24
Ensemble initial	5.16	5.82
Ensemble "ajusté"	6.73	7.24

Analyse de l'écart-type des erreurs

Le tableau 6.6 donne l'écart-type moyen de l'erreur (moyenne sur tout le domaine) à 10:00 et à 15:00, calculé à partir de la référence, la référence corrigée du bruit de mesure et les 2 ensembles. En moyenne, l'incertitude simulée par l'ensemble "ajusté" à 15:00 est de 7.24 ppb, valeur proche de celle trouvée à partir de la distribution de probabilité (c.f. figure 6.27b). L'incertitude de référence est de 8.88 ppb, valeur plus importante que celle simulée par l'ensemble. L'écart-type moyen de l'erreur de référence corrigée du bruit de mesure est de 7.24 ppb, valeur se rapprochant de celle simulée par l'ensemble. Ainsi, la variabilité de l'erreur du modèle est très bien reproduite par l'ensemble "ajusté". On notera que l'égalité à 7.24 ppb est bien sûr fortuite.

La répartition spatiale de l'incertitude obtenue à partir de l'ensemble "ajusté" est illustrée sur la figure 6.22. On retrouve les mêmes structures spatiales que pour l'ensemble initial. La dispersion de l'ensemble varie de 5 ppb à 12 ppb en moyenne temporelle, ce qui est deux fois plus grand que les valeurs de dispersion de l'ensemble initial.

Diagramme dispersion-erreur

La figure 6.28 illustre un diagramme de dispersion-erreur spatio-temporel du même type que la figure 6.23. On observe sur le diagramme une courbe horizontale qui signifie que la dispersion de l'ensemble n'est pas corrélée avec l'erreur RMS de référence. Apparemment, le fait d'ajuster l'erreur due aux conditions aux limites avec un facteur proche de 2.5 détruit la faible corrélation observée sur la figure 6.23.

Analyse des corrélations entre les erreurs

Les corrélations horizontales entre les erreurs en fonction de la distance sont très similaires à celles obtenues avec l'ensemble initial (trop importantes par rapport à celles obtenues à partir de la référence) et ne sont donc pas présentées.

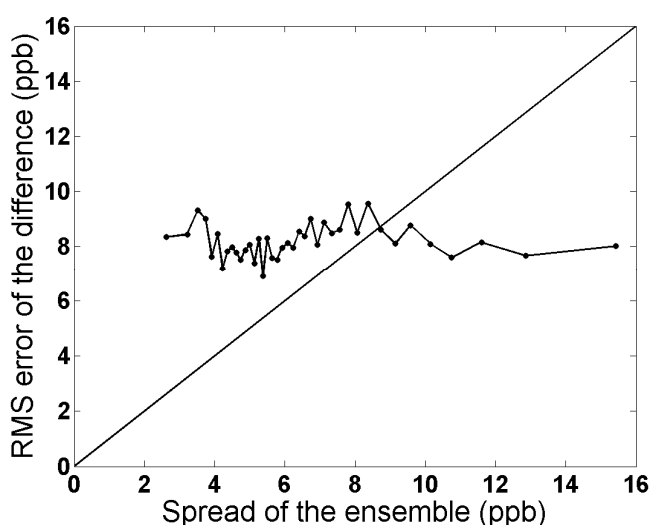


Fig. 6.28 - Diagramme de dispersion-erreur. Erreur RMS de référence par rapport à la dispersion de l'ensemble "ajusté" définie comme l'écart-type des 30 valeurs simulées à 15:00. Les valeurs ont été moyennées dans des quantiles (bins) de taille variable mais peuplés par le même nombre constant de valeurs (40 réalisations).

6.5.3 Extension de l'évaluation du deuxième ensemble à l'été 2004

Afin de tester la représentativité temporelle des résultats, nous avons procédé à l'extension de l'évaluation de l'ensemble "ajusté" qui garantit une bonne représentation de l'écart-type dans la troposphère libre à l'été 2004. Nous avons choisi d'évaluer la première configuration de l'ensemble seulement pour juillet 2004 pour des raisons liées au temps de calcul nécessaire. C'est pourquoi nous ne présentons pas l'extension de l'évaluation du premier ensemble dans ces travaux. Les 30 simulations de Monte Carlo ont été réalisées pour les mois de juin, juillet et août 2004. Une simulation de référence a également été réalisée pour les mois de juin et août 2004. Les résultats obtenus étant très similaires à ceux obtenus pour le mois de juillet 2004, nous donnons ici seulement une synthèse des résultats sur l'évolution spatiale de l'erreur du modèle (variabilité et corrélation entre les erreurs). Les figures sont présentées dans l'Annexe E.

Globalement, l'ensemble estime assez bien la variabilité de l'erreur à la surface et dans la troposphère libre (c.f. tableau 6.7). En moyenne sur le domaine, à 15:00, on retrouve une variabilité moyenne de l'erreur de 8.13 ppb pour l'ensemble "ajusté", 8.44 ppb pour la référence et 7.31 ppb pour la référence corrigée du bruit de mesure. Pour la période juin-août 2004, la dispersion de l'ensemble est plus importante que pour le mois de juillet seul (c.f. tableau 6.6). Pour l'été 2004, l'ensemble reproduit donc très bien les différences moyennes entre le modèle et les observations, avec ou sans correction du bruit. Egalement, en altitude, l'accord est très bon (c.f. Annexe E) ce qui montre que le facteur d'ajustement déduit pour le mois de juillet est valable pour tout l'été 2004. Par ailleurs les corrélations horizontale et verticale entre les erreurs du modèle sont toujours surestimées.

Tab. 6.7 - Ecart-type moyen (moyenne sur l'été 2004 et sur l'ensemble du domaine) obtenu à 10:00 et à 15:00 pour la référence (avec et sans correction du bruit de mesure) et l'ensemble "ajusté". Les valeurs sont données en ppb.

	10:00	15:00
Référence	8.24	8.44
Référence corrigée du bruit de mesure	7.02	7.31
Ensemble "ajusté"	7.87	8.13

6.5.4 Conclusion intermédiaire

Les résultats de l'évaluation de l'ensemble "ajusté" montrent que la variabilité de l'erreur du modèle est plutôt bien estimée en moyenne pour l'ozone proche de la surface. Dans la troposphère libre, un ajustement est nécessaire, mais un seul facteur d'ajustement permet de bien restituer la variabilité verticale de l'erreur. En revanche, tout comme l'ensemble initial, à la fois la corrélation à la surface et la corrélation verticale de l'erreur du modèle sont surestimées. En l'occurrence, la méthode de modélisation de l'incertitude due aux conditions aux limites qui a été retenue ne permet pas de prévoir les variabilités spatiale et temporelle de ces incertitudes. Les raisons possibles seront discutées dans la section "limitations" en fin de chapitre.

6.6 Comparaison avec d'autres approches et limitations

6.6.1 Comparaisons avec d'autres approches

Que l'on considère l'ensemble initial ou "ajusté", la distribution spatiale de la variabilité à la surface montre une variabilité plus importante au niveau de la région de la Ruhr et de l'Angleterre. Ce résultat a déjà été montré par plusieurs travaux antérieurs dont ceux de Mallet et Sportisse (2006a et b) qui ont mis en œuvre différents ensembles en perturbant les paramétrisations physiques et numériques ainsi que les données d'entrée de manière indépendante ou couplée, et ceux de Carvalho et al. (2007), qui ont construit un ensemble en perturbant les émissions, la chimie ainsi que la météorologie (à partir de différents champs météorologiques issus d'une modélisation d'ensemble avec le modèle global Arpège de Météo-France). L'incertitude plus importante des simulations d'ozone de surface dans cette région se trouve donc confortée par plusieurs études indépendantes.

En moyenne sur l'été 2004, un écart-type global de 8 ppb (~16%) est trouvé, ce qui est en accord avec les résultats de Mallet et Sportisse (2006a) qui trouvent un écart-type global de 17% (en moyenne sur un domaine similaire au nôtre). Cependant leur approche diffère de la nôtre, ce qui donne une confiance supplémentaire dans nos résultats.

Dans Carvalho et al. (2007), l'écart-type trouvé pour un jour donné varie de 0 à 2.5 ppb, et est en moyenne de l'ordre de 1 ppb. Ces résultats montrent que l'ensemble construit sous estime très largement l'incertitude globale si l'on compare avec les valeurs

trouvées dans ces travaux. Cette sous-estimation est probablement due au fait que l'écart-type n'est examiné que pour un jour donné. Par ailleurs, Carvalho et al. (2007) ont montré que le plus fort poids des perturbations d'ensemble était lié globalement à la météorologie. Le fait de ne pas perturber tous les paramètres météorologiques dans notre travail (notamment les champs de vent) pourrait donc entraîner une légère sous-évaluation de la dispersion de notre ensemble mais qui n'est de fait pas observée.

Un autre type d'ensemble a été développé par Vautard et al. (2006), à partir de sept modèles régionaux de la qualité de l'air. Une dispersion moyenne de l'ensemble de 6 ppb et une erreur RMS du modèle de 5 ppb ont été trouvées. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles trouvées avec notre approche. Encore une fois, ces résultats ne sont pas forcément prévisibles puisque les deux approches sont complètement indépendantes. On notera par ailleurs que l'erreur RMS apparaît être plus faible dans Vautard et al. (2006), ce qui s'explique en partie par le fait que les observations utilisées proviennent d'un jeu de données différent de celui qui est utilisé dans ces travaux.

6.6.2 Limitations de notre approche

Dans notre approche, certaines sources d'erreur n'ont pas été prises en compte, telles que celles associées aux champs de vent et de température ou encore aux différentes paramétrisations (schéma chimique). D'autre part, certaines sources d'erreurs ont été prises en compte de façon sans doute non-optimale à partir d'un modèle, comme par exemple les conditions aux limites. Ceci a un impact non négligeable sur la variabilité globale, spatio-temporelle ainsi que sur les corrélations de l'ensemble.

Pour les émissions, la hauteur de la couche limite ou encore le dépôt, bien que les erreurs aient été prises en compte, on ne peut pas savoir *a priori* si les corrélations spatiales des erreurs l'ont été correctement. *A posteriori*, à la lumière des résultats, on constate que les erreurs devraient être moins corrélées spatialement. Il est donc possible que des composantes plus stochastiques, c'est-à-dire fortement décorrélatées spatialement, aient été sous-estimées dans le bilan des erreurs.

Pour la météorologie, les incertitudes sur les champs de vent (transport) n'ont pas été prises en compte. Ces incertitudes sont probablement non pas systématiques mais stochastiques (par exemple on estime mal une direction de vent ou encore la position d'un panache pour une situation donnée).

Pour les conditions aux limites, les erreurs ont été simulées via un "modèle global" qui est beaucoup plus auto-corrélé spatialement que la réalité. On constate qu'il manque également des composantes de bruit plus stochastiques, ce qui se traduit par une sous-estimation à la fois de la variabilité et des corrélations. De plus, en l'état des connaissances actuelles, nous n'avons aucun élément d'information sur la variabilité temporelle de l'incertitude due aux conditions aux limites qui permettrait de bien fixer les corrélations entre les erreurs.

6.7 Résumé et conclusions

Un travail préparatoire à l'assimilation de données basée sur l'EnKF, notamment sur la simulation de la covariance d'erreur du modèle qui s'obtient à partir de différentes configurations du modèle, a été entrepris.

Dans un premier temps, une étude de sensibilité du modèle CHIMERE à ses paramètres d'entrée a été réalisée afin d'identifier les paramètres affectant principalement les concentrations d'ozone. Les paramètres identifiés sont les conditions aux limites d'ozone, le taux de dépôt, la hauteur de la couche limite, la photolyse du NO_2 et les émissions anthropiques de NO_x et de COV. La variabilité engendrée par ce sous-ensemble de six paramètres représente environ 90% de la variabilité engendrée par l'ensemble des paramètres influant principalement sur les concentrations d'ozone, ce qui justifie notre choix.

Nous avons mis en œuvre une méthode de perturbation réaliste, c'est-à-dire en prenant en compte non seulement les incertitudes existantes sur les paramètres choisis mais également les corrélations spatio-temporelles existantes entre les erreurs dues à différents paramètres. Des longueurs de décorrélation spatiales et temporelles ont donc été estimées pour chacun des paramètres.

Un ensemble de 30 membres (=30 simulations pour lesquelles chacun des paramètres identifiés est perturbé) a été construit selon l'approche Monte Carlo pour le mois de juillet 2004. Afin d'évaluer si l'ensemble du modèle construit représente correctement les erreurs de modélisation, nous l'avons comparé à une référence, qui correspond à la différence entre le modèle de référence et les observations (MOZAIC dans la dimension verticale et AIRBASE à la surface). Outre l'utilisation d'un outil statistique développé pour l'évaluation des prévisions météorologiques d'ensemble, tel que le diagramme de Talagrand, nous avons également utilisé d'autres outils permettant d'évaluer les propriétés spatiales et temporelles de l'ensemble.

Les résultats ont montré que, en moyenne, l'incertitude du modèle est plutôt bien estimée en termes de variabilité pour l'ozone proche de la surface. Des valeurs de l'ordre de 7 ppb ont été trouvées, ce qui est proche de l'écart-type de l'erreur réelle. En revanche, dans la troposphère libre, la variabilité est sous-estimée et un ajustement a donc été nécessaire. Il a été effectué sur les conditions aux limites qui influent principalement dans cette région de l'atmosphère. La configuration ajustée de l'ensemble a montré qu'un seul facteur d'ajustement permet de bien restituer la variabilité verticale de l'erreur, tout en influant relativement peu à la surface. Par ailleurs, à la fois la corrélation horizontale et la corrélation verticale de l'erreur du modèle sont surestimées. En effet, on trouve une longueur de décorrélation spatiale de 800 km pour l'erreur réelle du modèle alors que pour l'ensemble, elle apparaît 2 à 3 fois plus importante. L'analyse des caractéristiques de l'ensemble "ajusté" pour l'été 2004 a montré des résultats similaires à ceux obtenus pour juillet 2004.

L'ensemble "ajusté" construit peut donc être utilisé dans le cadre de l'assimilation des données IASI par la méthode utilisant le Filtre de Kalman d'Ensemble du point de vue des variances, mais la surestimation des corrélations verticales nécessitera une attention particulière pour éviter une correction trop importante des champs éloignés du "lieu" de la mesure. Ceci est par exemple possible en appliquant une approche dite "locale" pour

laquelle seules les observations les plus proches du point concerné sont assimilées. Par exemple, l'étude effectuée suggère d'intégrer une telle méthode dans le schéma de l'assimilation et de choisir une distance en dessous de 800 km pour assimiler les observations de surface.

Chapitre 7

Conclusions générales et perspectives

L'objectif de mes travaux de thèse a été d'exploiter les observations d'ozone fournies par l'instrument IASI à bord du satellite MetOp et, plus particulièrement, de préparer l'assimilation de ces données dans un modèle régional de chimie-transport dans le but d'améliorer la prévision des épisodes de pollution en ozone. Un premier objectif a été d'examiner le potentiel de IASI pour mesurer non seulement la colonne totale d'ozone qui est le produit le plus fiable et relativement facile à restituer, mais également l'ozone troposphérique pour l'étude de la pollution dans les basses couches de l'atmosphère (travaux réalisés au LATMOS). Pour atteindre cet objectif, une évaluation complète des concentrations d'ozone restituées à partir des mesures IASI a été réalisée. Un deuxième objectif a été de construire un ensemble reflétant de manière réaliste les incertitudes du modèle CHIMERE afin de permettre l'utilisation de la méthode du Filtre de Kalman d'Ensemble pour l'assimilation des données IASI (travaux réalisés au LISA).

Lorsque l'on dispose de données satellitaires, la première étape consiste à extraire l'information concernant la variable géophysique d'étude à partir des spectres de luminances mesurés par l'instrument spatial. Afin de restituer les concentrations d'ozone à partir des mesures IASI, deux algorithmes d'inversion ont été utilisés. Un algorithme qui utilise un réseau de neurones (*NN*, Turquety et al., 2004) a permis d'inverser des colonnes totales d'ozone à l'échelle globale. D'autre part, des profils verticaux d'ozone (et des colonnes partielles dans la troposphère) ont été obtenus localement à l'aide d'un algorithme basé sur l'interpolation optimale (*Atmosphit*, Coheur et al., 2005). Ce dernier, basé sur la méthode d'estimation optimale (Rodgers, 1990) a également permis de caractériser les inversions en terme de sensibilité verticale ainsi que de fournir un bilan d'erreur détaillé, informations nécessaires pour toute utilisation optimale des données satellitaires.

Nos études ont montré que la sensibilité de l'instrument IASI à l'ozone est maximale dans la troposphère libre mais elle est limitée aux premières couches de l'atmosphère et dans la stratosphère. Près de trois éléments d'information indépendants sur la distribution verticale de l'ozone peuvent être restitués avec une résolution verticale de 6-8 km environ. Dans la troposphère, un peu plus d'un élément d'information peut être obtenu. Une étude sur le rôle du contraste thermique défini comme la différence de température entre la surface et la première couche atmosphérique a été réalisée. Ce paramètre a un impact considérable sur la sensibilité des sondeurs infrarouges à la couche limite. Plus le contraste thermique est grand et meilleure est la sensibilité des instruments mesurant dans

l'infrarouge à la couche limite. Les périodes de haute sensibilité sont observées pendant l'été au cours de la journée, au-dessus des continents, ce qui correspond aux périodes d'apparition des épisodes de pollution. Ainsi on s'attend à ce que l'instrument IASI fournisse des mesures mieux résolues verticalement et plus précises lors de l'orbite du matin au-dessus des continents.

Les performances des inversions estimées sur un ensemble de profils IASI inversés pour plus d'une année de mesures (juin 2007- août 2008) ont donné une précision globale de 11.5%, 15% et 25% sur les colonnes [surface-16 km], [surface-12 km] et [surface-6 km] respectivement et de 20-40% pour les profils verticaux. L'erreur totale sur la colonne [surface-42 km], proche de la colonne totale a été estimée à 3.5%.

Les inversions IASI ont été validées avec des observations indépendantes disponibles pendant la période d'étude (juin 2007-décembre 2008). La comparaison des colonnes totales d'ozone avec les instruments GOME-2/MetOp et ceux du réseau Dobson et Brewer mesurant dans le domaine de l'UV-vis ont montré de très bonnes corrélations supérieures à 0.85. Les inversions IASI ont montré un biais positif de 9 DU (~3%) par rapport aux colonnes totales obtenues à partir des instruments mesurant dans le domaine de l'UV-vis. Les colonnes totales IASI inversées ont également été comparées à l'ozone fourni par des instruments mesurant dans l'IR (TES/Aura et AIRS/Aqua). Les résultats ont montré des corrélations très satisfaisantes entre les trois instruments. Les inversions IASI se situent entre celles de TES et AIRS pour la période analysée. Nous avons également montré que les colonnes partielles intégrées IASI dans la troposphère sont en très bon accord avec celles déduites des mesures de sondes d'ozone après convolution avec les fonctions de lissage. Des coefficients de corrélation de 0.95 et de 0.77 ont été obtenus pour les colonnes [surface-6 km] et [surface-12 km] respectivement. Les comparaisons entre les colonnes partielles inversées IASI, celles simulées par CHIMERE et celles obtenues par les sondes d'ozone dans la troposphère ont montré que les données IASI devraient apporter une source d'information essentielle pour l'amélioration des conditions de fond de l'ozone en Europe.

Bien que le travail de validation des données IASI ait montré le potentiel de l'instrument à mesurer l'ozone notamment dans la troposphère, il a également permis d'identifier plusieurs limitations aux algorithmes d'inversion. Tout d'abord, l'émissivité de surface et l'altitude de surface ne sont pas prises en compte dans cette version du code *NN*. D'autre part, la connaissance *a priori* du *NN* étant acquise de manière globale au cours de la phase d'apprentissage, nous avons vu qu'il était difficile d'appliquer les méthodes classiques de caractérisation des inversions aux *NN*. L'algorithme de restitution *Atmosphit* présente d'une part une plus grande souplesse d'ajustement de certains paramètres (principalement émissivité et altitude de surface) et d'autre part l'avantage de caractériser les inversions. Cependant, le temps de calcul pour inverser chaque spectre est trop long. Il n'est donc pas possible d'obtenir une distribution globale par inversion avec *Atmosphit*, notamment de colonnes partielles dans la troposphère, et il est difficile d'utiliser les inversions dans le cadre particulier de leur assimilation dans un modèle de chimie-transport.

Un nouvel algorithme optimisé basé sur la méthode d'estimation optimale est en cours de développement afin de restituer des profils verticaux d'ozone en quasi temps réel. Cet algorithme, utilisant des tables de corrélations (LUT pour look-up tables en anglais) est une adaptation de l'algorithme Fast Operational/Optimal Retrieval on Layers for IASI (FORLI)

actuellement utilisé pour l'acide nitrique (Wespes et al., 2009) et le monoxyde de carbone (George et al., 2009; Turquety et al., 2009). Cet algorithme présente l'avantage principal de donner accès à des distributions globales des colonnes partielles d'ozone dans la troposphère. Ces nouvelles déterminations d'ozone devront être validées avec les observations existantes, à l'image de ce qui a été entrepris dans ce travail de thèse, avec les autres mesures satellitaires et sondes disponibles.

Ces travaux de validation ont été publiés dans *Atmospheric Chemistry and Physics* dans la section spéciale IASI (Boynard et al., 2009).

Pour la partie modélisation de mon travail, les travaux réalisés s'intègrent dans le cadre de l'assimilation de données IASI dans le modèle CHIMERE, en utilisant le Filtre de Kalman d'Ensemble. Cette méthode, comme nous l'avons introduit brièvement dans le chapitre 1, nécessite de pouvoir estimer la covariance d'erreur du modèle, notamment dans la troposphère libre où IASI apportera vraisemblablement plus d'information, en utilisant une méthode d'ensemble. Dans ce contexte, un important travail sur la construction de l'ensemble à utiliser et sur l'estimation de l'incertitude du modèle CHIMERE a été entrepris. Un ensemble peut être construit soit à partir de différentes simulations d'un même modèle utilisant différentes configurations soit à partir d'un ensemble de simulations de plusieurs modèles différents. Les membres de l'ensemble, représentés par ces simulations, doivent être choisis de manière à représenter de façon réaliste l'erreur du modèle. Toute la difficulté de la mise en œuvre de l'ensemble réside dans le choix des membres, c'est-à-dire dans le choix des paramètres qui vont être perturbés afin de réaliser les différentes simulations. La covariance d'erreur du modèle peut alors être calculée à partir de l'ensemble construit.

Il existe trois sources d'incertitude dans les modèles de chimie-transport : la paramétrisation physique, la formulation numérique et les données d'entrée. Dans ces travaux, les sources d'incertitude étudiées sont les données d'entrée du modèle, influençant principalement les concentrations d'ozone, à l'exception des champs de vent et de température, et, autant que possible, la paramétrisation physique du modèle (turbulence, vitesse de dépôt...). L'impact des différentes sources d'incertitude affectant la simulation des champs d'ozone sur la matrice de covariance des erreurs a été évalué en réalisant une étude de sensibilité du modèle à ses paramètres d'entrée. Nos travaux ont montré que les paramètres d'entrée affectant principalement les concentrations d'ozone sont les conditions aux limites de l'ozone, les émissions de NO_x et de COV, le taux de dépôt, la hauteur de la couche limite et le taux de photolyse de NO_2 . La variabilité engendrée par ces six paramètres représente environ 90% de la variabilité engendrée par l'ensemble des paramètres influant principalement sur les concentrations d'ozone.

La construction d'un ensemble de 30 membres, c'est-à-dire 30 configurations différentes du modèle, a été entreprise selon une approche Monte Carlo. Une étape essentielle a été de définir des facteurs de perturbation réalistes pour chacun des paramètres d'entrée les plus incertains. Pour cela, nous avons estimé des longueurs de décorrélation spatiales et temporelles pour chaque paramètre afin d'évaluer jusqu'à quelle distance deux erreurs sont corrélées.

L'évaluation de l'ensemble a été réalisée par rapport à des observations indépendantes (MOZAIC dans la dimension verticale et AIRBASE à la surface) pour le mois de juillet 2004 dans un premier temps, puis pour l'été 2004. La comparaison avec les observations a

montré que l'ensemble sous-estime la variabilité moyenne de l'incertitude du modèle dans la troposphère libre et, dans une moindre mesure, à la surface. Ce résultat était attendu puisque les conditions aux limites, paramètre influençant le plus dans cette région de l'atmosphère, sont issues d'un modèle global de chimie-transport. Nous avons ajusté les incertitudes sur les conditions aux limites et construit une deuxième configuration de l'ensemble. La configuration ajustée de l'ensemble a montré qu'un seul facteur d'ajustement permet de reproduire correctement la variabilité verticale de l'incertitude du modèle, tout en influant relativement peu à la surface. Une variabilité moyenne de l'ordre de 7 ppb a été trouvée aussi bien dans la troposphère libre qu'à la surface, ce qui est proche de l'écart-type moyen de l'erreur réelle. En revanche, les corrélations horizontales et verticales entre les erreurs sont estimées trop importantes en comparaison avec les observations. Ainsi l'ensemble "ajusté" mis en œuvre peut être utilisé dans le cadre de l'assimilation de données par la méthode utilisant le Filtre de Kalman d'Ensemble du point de vues des variances, mais la surestimation des corrélations verticales et à la surface nécessitera une attention particulière pour éviter une assimilation des données à une distance trop loin du "lieu" de la mesure. Ceci est par exemple possible en appliquant une approche dite "locale" dans laquelle seules les observations plus proches qu'une certaine distance de coupure sont assimilées. L'étude effectuée suggère d'intégrer une telle méthode dans le schéma de l'assimilation et de choisir une distance en dessous de 800 km.

Par ailleurs, nous avons mené une réflexion sur la façon d'inclure une correction de bruit de mesure. Cependant, bien que la méthodologie suivie soit intéressante, l'application d'une correction de bruit n'a pas donné de résultats concluants en raison du peu de données disponibles. La méthodologie serait plus fiable avec plus d'observations *in situ* disponibles.

Nous avons vu qu'il existe plusieurs limitations dans cette approche, notamment concernant les données météorologiques de vent. Une perspective du travail de construction de l'ensemble consiste à travailler avec les prévisions d'ensemble météorologiques afin de prendre en compte les erreurs sur les champs de vent et de température qui sont non négligeables, comme l'ont montré Carvalho et al. (2007).

En parallèle à mes travaux, une méthode d'assimilation séquentielle, basée sur l'EnKF a été implémentée pour assimiler les mesures d'ozone de surface dans le modèle de chimie-transport CHIMERE dans la région de l'Ile de France (Coman, 2008). Ces travaux ont montré que l'EnKF appliqué au modèle permet une meilleure reconstitution de la forme et de la position du panache pendant les épisodes de forte pollution analysés (Coman, 2008). Ces travaux sont actuellement adaptés afin d'assimiler les colonnes troposphériques d'ozone IASI dans le modèle CHIMERE conjointement aux mesures de surface, à l'échelle européenne. L'ensemble développé au cours de mes travaux sera intégré dans ce système. Par ailleurs, une autre perspective envisagée consiste à assimiler les données IASI dans CHIMERE afin de produire des climatologies 3D d'ozone plus précises au-dessus de l'Europe qui permettront de mieux évaluer les échanges verticaux entre la troposphère libre et la couche limite ainsi que les épisodes de pollution photochimique. D'autre part, la prévision de la qualité de l'air est effectuée à partir de champs d'ozone simulés par un modèle. On s'attend donc à ce qu'une amélioration de ces champs d'ozone contribue à une amélioration de la prévision de la qualité de l'air à courte échéance en particulier du système opérationnel de prévision de la qualité de l'air PREV'AIR qui est basé sur CHIMERE à l'INERIS.

Par ailleurs, il a été mis en évidence, théoriquement, que les mesures de l'ozone troposphérique pouvaient être améliorées en combinant les informations extraites des observations dans les domaines de l'UV-vis et de l'IR (Landgraf and Hadekamp, 2007; Worden et al., 2007). Des travaux sont en cours pour exploiter conjointement les observations des sondeurs IASI et GOME-2, en particulier pour améliorer la résolution verticale des profils restitués et pour générer des produits plus fiables dans la troposphère. Ces travaux sont menés dans le cadre du Satellite Application Facility on Ozone and Atmospheric Chemistry Monitoring (O3MSAF).

De manière plus générale, ces travaux de thèse s'inscrivent dans le cadre de l'initiative ESA-EU GMES (Global Monitoring for Environment and Security) dont un des enjeux pour la communauté scientifique, et plus largement pour les gestionnaires de la qualité de l'air est de construire un système intégré d'observations et de prévision de la qualité de l'air, opérationnel et autonome. Les principaux objectifs de cette initiative sont de fournir des climatologies de polluants affectant la qualité de l'air (O_3 , NO_2 , SO_2 , particules) pour différentes échelles spatiales (continentale, régionale, urbaine) et temporelles (épisodes extrêmes - tendances pluriannuelles) et de prédire la qualité de l'air à courte échéance afin de pouvoir anticiper des événements/périodes extrêmes de pollution (projets GEMS et MACC, portés par ECMWF).

A plus long terme, on peut imaginer que l'assimilation directe des luminances pourra être effectuée, au moins dans l'infrarouge, à l'image des développements en cours dans les centres de prévisions numériques. Notons cependant que l'utilisation directe et combinée des radiances dans l'IR et dans l'UV reste plus prospective, en particulier à cause de la complexité des codes de transfert radiatif. De plus, cela nécessitera de combiner des modèles de chimie-transport détaillés avec des codes de transfert radiatif rapides, nécessitant des performances de calcul en adéquation avec les contraintes de temps de la prévision opérationnelle. Pour les prochaines années, la prévision du "temps chimique" s'appuiera encore sur les produits inversés. Nos travaux de recherche, en analysant, validant et caractérisant les produits d'ozone qui sont obtenus à partir des spectres IASI, et en préparant les outils nécessaires à la mise en place des routines d'assimilation dans le modèle CHIMERE, permettent une exploitation optimale des données pour aider à la prévision des épisodes de pollution.

Annexe A

Réglementation et gestion de la qualité de l'air

A.1 Lois sur la pollution atmosphérique

La Convention de Genève, adoptée en 1979, a été le premier traité international à reconnaître à la fois les problèmes environnementaux et de santé causés par le transport transfrontalier à longue distance des polluants atmosphériques et le besoin de trouver des solutions à l'échelle des continents. Au cours de ces années, cette convention a permis le développement de plusieurs protocoles environnementaux au niveau international. L'un d'entre eux assure le financement à long terme du Programme concerté de surveillance continue et d'évaluation du transport à longue distance des polluants atmosphériques en Europe (EMEP). Six autres accords internationaux régissent respectivement les émissions de soufre (2 protocoles en 1985 et 1994), d'oxydes d'azote (1988), de COV (1999), de polluants organiques persistants (POP) et métaux lourds (1998). A la fin de l'année 1999 a été adopté, à Göteborg, un nouveau protocole portant sur plusieurs polluants (SO₂, NO_x, COV, NH₃, ozone troposphérique) et sur leurs effets sur l'environnement. Il vise à combattre à la fois l'acidification, l'eutrophisation et la pollution photochimique. Ce protocole représente un progrès majeur en matière de droit environnemental international. L'application de ces traités a permis de réduire assez fortement les émissions des précurseurs des pluies acides et de la pollution photochimique (SO₂, NO_x, COV) au cours des deux à trois dernières décennies, dans une majorité des pays européens (de plusieurs dizaines de pour cents).

Au niveau européen, afin de protéger la qualité de l'air ambiant, plusieurs réglementations communautaires ont émergé depuis le début des années 1980. Plusieurs directives européennes ont été adoptées entre 1980 et 1992 dans le but de fixer des niveaux de concentrations à ne pas dépasser dans l'air, pour un certain nombre de polluants tels que le dioxyde de soufre et les particules en suspension (1980), le plomb (1982), le dioxyde d'azote (1985) et l'ozone (1992) (Delmas, 2005; Sportisse, 2008). La directive "ozone" de 1992 implique en particulier la mise en place d'un réseau de surveillance et d'une procédure d'information et d'alerte de la population. A cette époque, les seuils d'information et d'alerte étaient respectivement de 180 µg m⁻³ et 360 µg m⁻³, en moyenne horaire. Afin de renforcer la protection de la qualité de l'air, une nouvelle directive "cadre" sur la gestion et l'évaluation de la qualité de l'air ambiant est adoptée en 1996. Cette directive "cadre" conduit à l'adoption de plusieurs directives "filles" qui fixent (ou

révisent) pour un certain nombre de polluants des valeurs limites et des seuils d'information ou d'alerte :

- la directive 1999-130/EC de 1999 concerne les particules, le soufre, le plomb et les oxydes d'azote;
- la directive 2000/69/EC de 2000 concerne le monoxyde de carbone et le benzène en 2000 (2000/69/EC);
- la directive 2002/3/EC de 2002 concerne l'ozone et fixe un nouveau seuil d'alerte plus sévère que celui de la directive ozone adoptée en 1992;
- la directive 2004/107/EC de 2004 concerne les métaux lourds, le mercure et les composés aromatiques polycycliques (HAP).

L'évolution des normes va dans le sens non seulement d'un renforcement des mesures mais aussi des restrictions des émissions de polluants. Les seuils réglementaires de certains polluants sont donnés dans le tableau 1.3.

En France, la LAURE, transcription en droit français de directives européennes, votée le 30 décembre 1996, a permis de renforcer les moyens réglementaires destinés à prévenir de la pollution liée au trafic automobile. De plus, elle a conduit à un renforcement de la surveillance de la qualité de l'air grâce à la mise en place de dispositifs de surveillance de la qualité de l'air sur l'ensemble du territoire français.

A.2 Les principales institutions en France

De nombreuses institutions, publiques, à caractère associatif ou privé, sont impliquées dans la gestion de l'environnement en France. La principale est le ministère en charge de l'environnement (ministère de l'Ecologie, de l'Energie, du développement durable et de la Mer) qui est notamment en charge de la mise en place et du suivi des réglementations ou de la surveillance de la qualité de l'air.

L'application des réglementations au niveau des départements et des régions relève des préfets, avec l'aide de divers services de l'Etat tels que les Directions Régionales de l'Industrie, de la Recherche et de l'Environnement (DRIRE) (Delmas, 2005). Outre les services de l'Etat, divers établissements publics interviennent dans la gestion et la prévention de la qualité de l'air. Parmi les plus importants on peut citer l'Agence De l'Environnement et la Maîtrise de l'Energie qui est un établissement public à caractère industriel et commercial créé en 1992 et placé sous la tutelle du ministère en charge de l'environnement, le ministère de la Recherche et le ministère de l'Industrie. Dans le domaine de l'air, l'ADEME est notamment responsable de la coordination technique du dispositif de surveillance de la qualité de l'air mis en place en France ainsi que de la gestion d'une base nationale de données sur la qualité de l'air (BDQA). On peut d'autre part citer l'INERIS qui est également un établissement public à caractère industriel et commercial placé sous la tutelle du ministère en charge de l'environnement. Sa mission est l'évaluation et la prévention des risques accidentels ou chroniques pour l'homme et l'environnement liés aux installations industrielles, aux substances chimiques et aux exploitations souterraines.

Enfin les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) sont des organismes français chargés de surveiller la qualité de l'air pour le compte de l'Etat et d'informer le public des niveaux de polluants ou particules mesurés au cours de la journée.

Tab. A.1 - Extraits des valeurs limites et des seuils d'alerte fixés par les directives européennes sur la qualité de l'air ambiant en vue de la protection de la santé. Les valeurs limites indiquées doivent être atteintes en 2005 ou 2010 au plus tard selon les polluants. D'après Delmas (2005)

Polluants	Valeurs limites	Critères associés (ce sont des valeurs moyennes)
Particules (PM10)	50 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur journalière à ne pas dépasser plus de 35 fois par an
	40 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur annuelle
Dioxyde de soufre	125 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur journalière à ne pas dépasser plus de 3 fois par an
	250 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur horaire à ne pas dépasser plus de 24 fois par an
	500 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur sur 3 heures consécutives (seuil d'alerte)
Dioxyde d'azote	200 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur horaire à ne pas dépasser plus de 18 fois par an
	40 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur annuelle
	400 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur sur 3 heures consécutives (seuil d'alerte)
Plomb	0.5 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur annuelle
Ozone	110 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur sur 8 heures
	180 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur horaire (seuil d'information)
	240 $\mu\text{g m}^{-3}$	Valeur horaire (seuil d'alerte)

Annexe B

Les bases de l'assimilation de données séquentielle

Une grande partie cette annexe est inspirée du site web :
http://www.cerfacs.fr/globc/publication/technicalreport/2007/revue_methodes_assimilation

B.1 Quelques définitions

Sont introduits ici certains concepts de base utilisés dans l'assimilation de données. Le système de notations choisi est celui utilisé habituellement en météorologie ou en océanographie.

Une des limitations d'un modèle est sa résolution qui ne lui permet pas de simuler, de manière exacte, l'état réel de l'atmosphère. On peut, en revanche, se rapprocher de cet état en estimant l'état réel moyen par maille du modèle, représenté par le vecteur \mathbf{x}^t (^t pour true en anglais) de dimension n , le nombre de mailles dans le modèle. Usuellement, le modèle produit un état simulé, appelé **état d'ébauche**, de l'état vrai, inconnu, du système. Dans le cas de systèmes statiques cet état est représenté par le vecteur \mathbf{x}^b (^b pour background en anglais) de dimension n . L'erreur du modèle (appelée également erreur de background) est définie par :

$$\boldsymbol{\varepsilon}^b = \mathbf{x}^b - \mathbf{x}^t \quad (\text{B.1})$$

et a pour moyenne $\overline{\boldsymbol{\varepsilon}^b}$ et covariance :

$$\mathbf{P}^b = \overline{(\boldsymbol{\varepsilon}^b - \overline{\boldsymbol{\varepsilon}^b})(\boldsymbol{\varepsilon}^b - \overline{\boldsymbol{\varepsilon}^b})^T} \quad (\text{B.2})$$

Dans le cas de systèmes dynamiques, l'état d'ébauche est représenté par le vecteur \mathbf{x}^f (^f pour forecast en anglais).

Les observations disponibles aux points de mesure sont représentées par un vecteur \mathbf{y} de dimension p . Les points de mesure ne correspondant que très rarement aux points de grille du modèle, il est nécessaire d'interpoler les simulations aux points de mesure. Cette interpolation se réalise généralement à l'aide d'un opérateur linéaire, noté \mathbf{H} , appelé opérateur d'observation. L'erreur d'observation est alors définie par :

$$\boldsymbol{\varepsilon}^o = \mathbf{y} - \mathbf{H}\mathbf{x}^t \quad (\text{B.3})$$

et a pour moyenne $\overline{\varepsilon^0}$ et covariance :

$$\mathbf{R} = \overline{(\varepsilon^0 - \overline{\varepsilon^0})(\varepsilon^0 - \overline{\varepsilon^0})^T} \quad (\text{B.4})$$

L'assimilation de données qui permet de corriger l'ébauche via les observations produit un état dit **état d'analyse**, représenté par le vecteur \mathbf{x}^a de dimension n . On peut définir l'erreur d'analyse, de moyenne $\overline{\varepsilon^a}$, par :

$$\varepsilon^a = \mathbf{x}^a - \mathbf{x}^t \quad (\text{B.5})$$

Les méthodes d'assimilation de données utilisent les informations sur le système en prenant en compte leurs erreurs, représentées respectivement par les covariances d'erreur d'ébauche (c'est-à-dire du modèle) et d'observation. Les covariances d'erreur d'ébauche jouent un rôle clé dans ces méthodes. Une approximation de ces dernières peut être obtenue en établissant des statistiques sur un ensemble d'assimilations.

L'assimilation de données est un problème inverse qui se décompose en deux étapes. Dans un premier temps, les incertitudes du modèle doivent être fournies en entrée, ensuite les observations sont utilisées afin d'évaluer le plus précisément possible les incertitudes du modèle qui sont alors les sorties du système.

B.2 Interpolation Statistique

L'analyse s'écrit sous la forme d'une combinaison linéaire entre notre connaissance *a priori* \mathbf{x}^b et les observations \mathbf{y} :

$$\mathbf{x}^a = \mathbf{x}^b - \mathbf{K}(\mathbf{y} - \mathbf{H}\mathbf{x}^b) \quad (\text{B.6})$$

où $(\mathbf{y} - \mathbf{H}\mathbf{x}^b)$ représente les différences entre observations et simulations prises aux points de mesure, \mathbf{K} est l'opérateur d'interpolation linéaire appelé matrice de gain. Le deuxième terme de la partie droite de l'équation B.6 représente en pratique la correction à appliquer dans le domaine d'étude (celui de la simulation). La matrice de gain s'écrit :

$$\mathbf{K} = \mathbf{B}\mathbf{H}^T [\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R}]^{-1} \quad (\text{B.7})$$

où $\mathbf{B} = E[\varepsilon^b(\varepsilon^b)^T]$ est la matrice des covariances des erreurs du modèle et $\mathbf{R} = E[\varepsilon^0(\varepsilon^0)^T]$, celle des covariances d'erreurs d'observation. $\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T$ correspond à la matrice \mathbf{B} réduite et $\mathbf{B}\mathbf{H}^T$ est la matrice des covariances des erreurs du modèle entre les points de grille du modèle et les points de mesure. \mathbf{K} regroupe donc les poids de l'interpolation linéaire qui dépendent des covariances d'erreur du modèle et des observations.

Ainsi les méthodes d'assimilation de données utilisent les informations sur le système en prenant en compte leurs erreurs, représentées par les covariances d'erreur du modèle et d'observation. Cependant l'évaluation de ces covariances est délicate et il est nécessaire de les modéliser. Dans le cas de l'Interpolation Statistique, les covariances d'erreur du modèle sont supposées constantes dans le temps.

Si les poids d'interpolation sont optimisés, alors il est possible de calculer la matrice de covariance d'erreur d'analyse donnée par :

$$\mathbf{A} = (\mathbf{I} - \mathbf{K}\mathbf{H})\mathbf{B} \quad (\text{B.8})$$

Les variances d'erreur d'analyse correspondant aux éléments diagonaux de \mathbf{A} permettent d'estimer la qualité de l'analyse obtenue.

B.3 Le Filtre de Kalman

Le Filtre de Kalman introduit par Kalman (1960) peut être appréhendé comme une extension de la méthode d'Interpolation Statistique pour laquelle l'assimilation des observations est réalisée de manière continue. De plus, le filtre de Kalman inclut un modèle d'évolution temporelle de l'état du système entre deux instants t_i et t_{i+1} . Pour décrire cette méthode, les notations usuellement utilisées jusqu'ici sont reprises. En particulier, la matrice des covariances d'erreur d'analyse, jusqu'ici notée \mathbf{A} , se nomme maintenant \mathbf{P}^a et celle d'ébauche, jusqu'ici notée \mathbf{B} , s'appelle \mathbf{P}^f de manière à mettre en évidence que l'ébauche (b comme background) est maintenant une prévision (f comme forecast). Elle est issue d'une simulation qui a été initialisée par une précédente analyse.

Contrairement à l'Interpolation Statistique, le Filtre de Kalman propose une loi d'évolution temporelle de la matrice d'erreur de prévision. Le modèle d'évolution non-linéaire est noté \mathbf{M} , linéarisé il se nomme \mathbf{M} et son adjoint \mathbf{M}^T . L'utilisation d'un modèle d'évolution entre deux instants t_i et t_{i+1} entraîne un nouveau type d'erreur nommée l'erreur du modèle qui est supposée non-biaisée et qui est décrite par la matrice de covariance d'erreur du modèle à chaque instant t_i par \mathbf{Q}_i . De plus, les erreurs d'analyse et du modèle sont supposées non-corrélées.

Le schéma d'assimilation est alors décrit par récurrence sur le temps d'observation i de la manière suivante : à partir d'une prévision à l'instant t_i et de sa matrice de covariance d'erreur de prévision \mathbf{P}_i^f , une analyse est réalisée permettant d'obtenir un état analysé et une matrice de covariances d'erreur d'analyse \mathbf{P}_i^a à l'instant t_i . Ensuite, à partir de l'état analysé, une prévision du temps t_i à t_{i+1} est effectuée. De manière similaire, la matrice de covariance d'erreur d'analyse est propagée par le modèle d'évolution linéaire afin d'obtenir la matrice de covariance d'erreur de prévision \mathbf{P}_{i+1}^f à l'instant t_{i+1} . Il suffit ensuite de répéter cette opération à chaque instant. L'étape la plus coûteuse est la deuxième, pendant laquelle l'état analysé et la matrice de covariances d'erreur d'analyse est propagée jusqu'au temps d'observation suivant.

De manière plus formelle, l'algorithme du filtre de Kalman entre les instants d'observation t_i et t_{i+1} peut être décrit par le système d'équations suivant :

$$\mathbf{K}_i = \mathbf{P}_i^f \mathbf{H}_i^T (\mathbf{H}_i \mathbf{P}_i^f \mathbf{H}_i^T + \mathbf{R}_i)^{-1} \quad (\text{B.9})$$

$$\mathbf{x}_i^a = \mathbf{x}_i^f + \mathbf{K}_i (\mathbf{y}_i^o - \mathbf{H}_i \mathbf{x}_i^f) \quad (\text{B.10})$$

$$\mathbf{P}_i^a = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_i \mathbf{H}_i) \mathbf{P}_i^f \quad (\text{B.11})$$

$$\mathbf{x}_{i+1}^f = \mathbf{M}_{i \rightarrow i+1} (\mathbf{x}_i^a) \quad (\text{B.12})$$

$$\mathbf{P}_{i+1}^f = \mathbf{M}_{i \rightarrow i+1} \mathbf{P}_i^a \mathbf{M}_{i \rightarrow i+1}^T + \mathbf{Q}_i \quad (\text{B.13})$$

Les trois premières équations sont exactement les mêmes que celles de l'Interpolation Statistique. L'équation B.12 représente la prévision de l'état de l'atmosphère à l'instant t_{i+1} par propagation de l'analyse de t_i à t_{i+1} via le modèle linéaire d'évolution \mathbf{M} . L'équation B.13 représente les covariances d'erreur de prévision au temps t_{i+1} par propagation des covariances d'erreur d'analyse \mathbf{P}_i^a de t_i à t_{i+1} par le modèle d'évolution linéaire. L'équation montre que les covariances d'erreur de prévision dépendent également des covariances de l'erreur du modèle \mathbf{Q}_i .

B.4 Le Filtre de Kalman d'Ensemble

Le Filtre de Kalman d'Ensemble peut être décrit de la même manière que la figure B.1. A partir d'un ensemble de conditions initiales, un ensemble d'états d'ébauche à l'instant t_i est construit en intégrant le modèle d'évolution. La matrice de covariance d'erreur de prévision \mathbf{P}_i^f peut alors être calculée à partir de cet échantillon à tout instant. On peut ainsi calculer la matrice de gain \mathbf{K} . Chaque ébauche est utilisée pour effectuer une analyse à l'instant t_i comme décrit par l'équation B.10. L'ensemble des états analysés est alors propagé jusqu'à l'instant t_{i+1} , ce qui permet d'estimer la matrice \mathbf{P}_{i+1}^f et ainsi de suite.

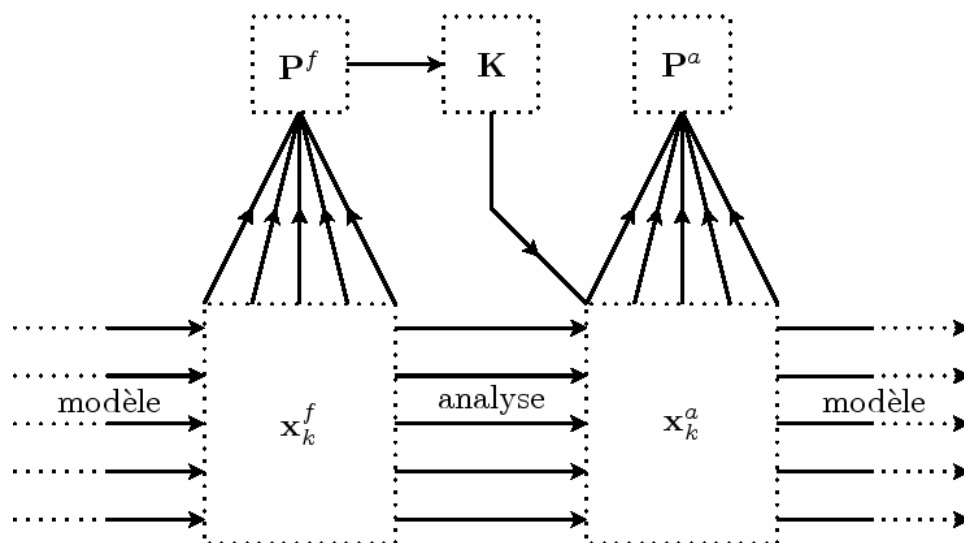


Fig. B.1 - Schématisation des différentes étapes du filtre de Kalman d'ensemble lors d'un cycle d'assimilation du temps t_i au temps t_{i+1} . L'indice k variant de 1 à N représente les différents membres de l'ensemble (<http://www.cerfacs.fr>).

Annexe C

Le tourbillon potentiel : un traceur de masses d'air stratosphérique

Afin de déterminer la dynamique des masses d'air à grande échelle, on utilise des paramètres conservatifs, c'est-à-dire des paramètres qui sont conservés lors du déplacement d'une masse d'air. Un traceur dynamique, suffisamment conservatif à l'échelle de quelques jours pour permettre d'étudier les échanges stratosphère-troposphère, est le tourbillon potentiel (noté PV pour Potential Vorticity), qui s'écrit sous la forme :

$$PV = \frac{\vec{\xi}_a \cdot \vec{\nabla} \theta}{\rho} \quad (C.1)$$

où ρ est la masse volumique, $\vec{\xi}_a$ le tourbillon absolu correspondant au rotationnel du champ de la vitesse absolue et $\vec{\nabla} \theta$ le gradient de la température potentielle θ c'est-à-dire la température d'une particule d'air sec amenée de façon adiabatique au niveau de la pression de surface P_s :

$$\theta = T \left(\frac{P_s}{P} \right)^{\frac{R}{c_p}} \quad (C.2)$$

où T est la température de la particule au niveau de pression P , R la constante spécifique de l'air sec ($R = 287.05 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$) et c_p la chaleur massique à la pression constante de l'air sec ($c_p = 1005 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$).

Comme c'est une quantité conservée lors de tout mouvement adiabatique (mouvement sur une surface isentrope à θ constante) sans frottement, la PV se comporte comme un traceur dynamique. La PV sur une surface isentrope θ est généralement calculée selon l'expression suivante :

$$PV = \frac{(f + \xi_{r\theta})}{\rho} \frac{\partial \theta}{\partial P} \quad (C.3)$$

où f est le facteur de Coriolis, $\xi_{r\theta}$ la composante verticale du tourbillon relatif sur une surface isentrope θ et $\frac{\partial \theta}{\partial p}$ la stabilité statique. Le facteur de Coriolis étant proportionnel au sinus de la latitude, la PV est positive dans l'hémisphère nord et négative dans l'hémisphère sud. De plus, la PV est très aléatoire au niveau des tropiques, et n'est donc pas utilisable en tant que traceur dans ces régions. De même, il n'est pas possible d'utiliser de la PV comme traceur dynamique à l'échelle globale. En particulier, aux hautes latitudes on utilise un autre paramètre conservatif qu'est la température potentielle.

Sachant que la PV dépend de la stabilité statique (équation C.3) et que les surfaces isentropes sont beaucoup plus serrées dans la stratosphère que dans la troposphère, les valeurs de PV sont beaucoup plus importantes dans la stratosphère que dans la troposphère qui est plus instable. On peut alors introduire la tropopause dynamique (Reed, 1950) qui repose sur un seuil de PV dont les valeurs varient entre 1 et 2 PVU selon la hauteur, l'unité de vorticité potentielle (PVU) étant définie par $1 \text{ PVU} = 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ K kg}^{-1}$. Ce paramètre dynamique est ainsi utilisé pour différencier les masses d'air troposphérique et les masses d'air stratosphérique.

En considérant qu'elle est conservée à l'échelle de quelques jours, la PV est donc utilisée pour différencier les masses d'air troposphérique et les masses d'air stratosphérique. Ainsi, lors des mélanges de masses d'air entre la stratosphère et la troposphère, supposés adiabatiques pendant une foliation de tropopause, la PV se comporte comme un traceur dynamique sur les surfaces isentropes (Danielsen, 1968). Elle peut également être utilisée pour la localisation de barrières dynamiques d'une autre nature, telles que le vortex polaire.

On notera par ailleurs que l'utilisation d'espèces chimiques caractérisées par une durée de vie suffisante pour être conservatives à une échelle de temps de quelques jours, telles que l'ozone ou le N_2O (El Amraoui et al., 2008) permet également de diagnostiquer l'origine des masses d'air.

Annexe D

Suite des résultats de l'étude de sensibilité du modèle CHIMERE à ses paramètres d'entrée

Nous avons fait le choix, dans le chapitre 6, de ne présenter les résultats de l'étude de sensibilité que pour les paramètres influant principalement sur les concentrations d'ozone. Ici, nous présentons la suite des résultats de cette étude, notamment pour les paramètres ayant une influence moyenne, en considérant l'erreur RMS moyenne pondérée (c.f. partie 6.2.3).

D.1 Emissions biogéniques de COV

Les émissions biogéniques proviennent des végétaux qui émettent du terpène et de l'isoprène, les zones les plus touchées sont donc celles possédant la plus grande densité foliaire, en particulier les forêts, comme le montre la figure D.1.

D.2 Photolyse de l'ozone

Une augmentation de la photolyse de l'ozone entraîne une augmentation légère des quantités d'ozone sur la partie Nord de l'Europe, et une diminution sur la partie Sud (figure D.2). Le changement de signe de l'effet correspond en principe à la prédominance d'un régime chimique dit COV-limité dans la partie Nord-Ouest de l'Europe (émissions très fortes), pour laquelle la production d'ozone dépend de la disponibilité des COV et de la source des radicaux HO_x , d'où la sensibilité positive par rapport à la photolyse de l'ozone (Beekmann et Vautard, 2009). Dans le régime chimique limité par les NO_x , la perte d'ozone par photolyse devient prépondérante.

D.3 Taux de mélange vertical

Les zones les plus perturbées sont situées majoritairement au niveau des côtes et au-dessus de la mer mais également en Angleterre (c.f. figure D.3). Dans ces zones de fortes émissions de NO , l'augmentation du taux de mélange permet de diluer plus fortement le NO entre la surface et le reste de la couche limite, et ainsi diminuer la titration de l'ozone par le NO .

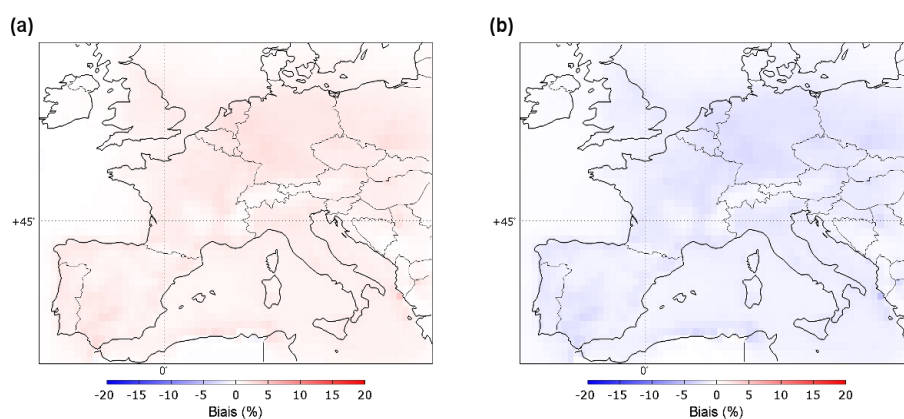


Fig. D.1 - Distribution du biais relatif calculé à la surface pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) des émissions biogéniques de COV.

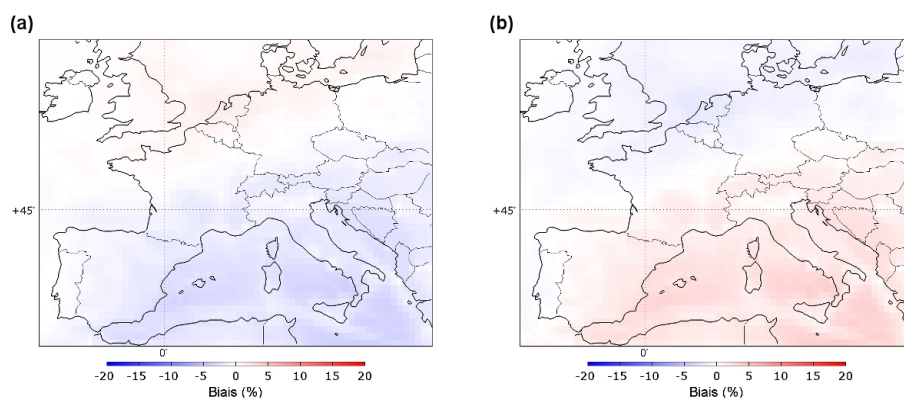


Fig. D.2 - Distribution du biais relatif calculé à la surface pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) de la fréquence de photolyse de l'ozone.

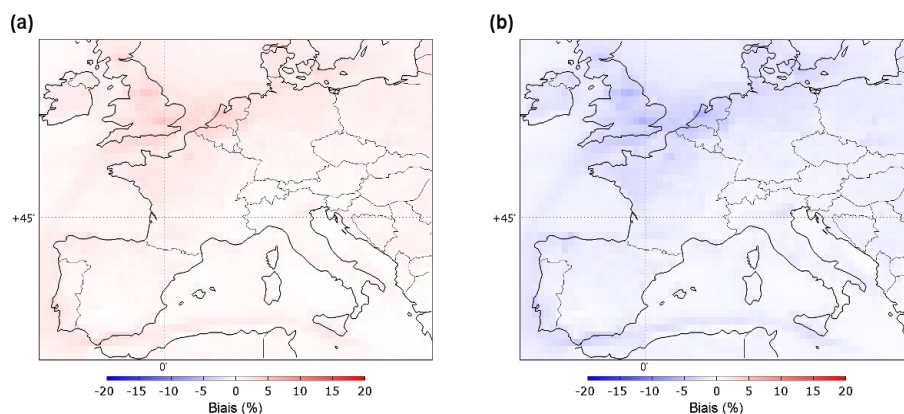


Fig. D.3 - Distribution du biais relatif calculé à la surface pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) du taux de mélange vertical.

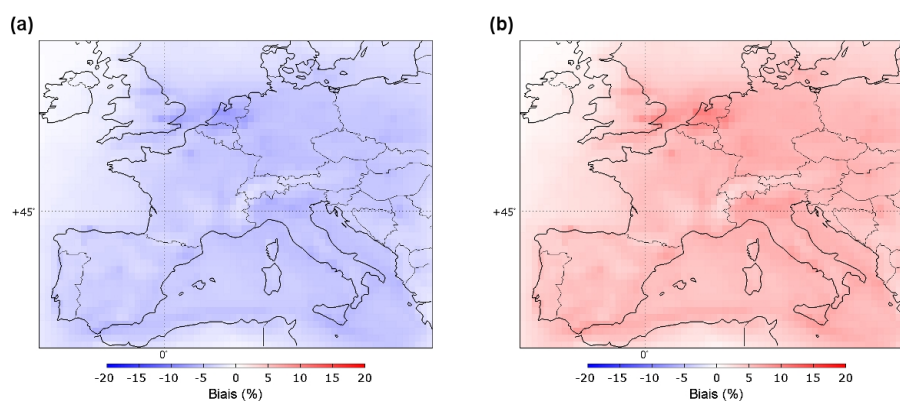


Fig. D.4 - Distribution du biais relatif calculé à la surface pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) de l'humidité spécifique.

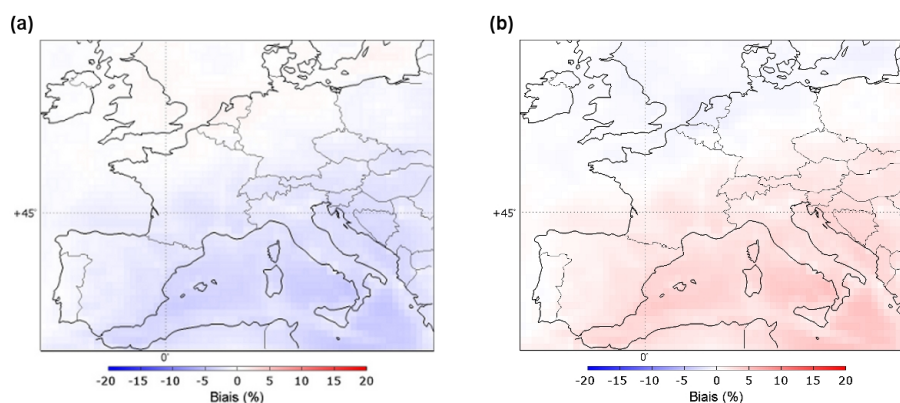


Fig. D.5 - Distribution du biais relatif calculé à la surface pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) de la vitesse de réaction de O_3 -NO.

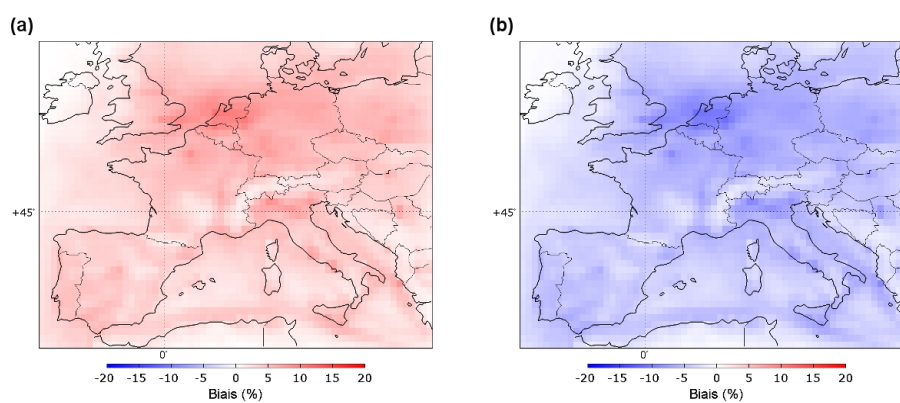


Fig. D.6 - Distribution du biais relatif calculé à la surface pour une perturbation de +20% (a) et -20% (b) du flux actinique.

D.4 Humidité spécifique

Une grande partie du domaine est touchée par la modification de l'humidité spécifique. On observe une évolution des quantités de l'ozone dans le sens inverse de l'évolution de l'humidité. La vapeur d'eau intervient principalement dans la synthèse des radicaux OH à partir de la photolyse de l'ozone, ce qui constitue une perte de l'ozone dans des régions de concentrations d'oxydes d'azote relativement faibles. Dans ces régions, l'augmentation des teneurs en radicaux HO_x constitue une perte supplémentaire pour l'ozone.

D.5 Vitesse de réaction de $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$

Comme attendu, on observe une diminution assez homogène des quantités d'ozone lorsque l'on augmente la cinétique de cette réaction (figure D.5), due à la réaction de titration de l'ozone par NO. L'effet est le plus fort dans les zones de fortes émissions de NO (Benelux).

D.6 Influence des nuages sur l'ozone via le flux actinique

Ici, on a simplement le phénomène inverse que pour la vitesse de réaction de O₃-NO, l'impact de la photolyse de NO₂ étant la plus importante (figure D.6).

Annexe E

Evaluation de l'ensemble pour l'été 2004

Nous présentons ici les résultats détaillés de l'évaluation de l'ensemble avec ajustement de l'incertitude sur les conditions aux limites pour l'été 2004. L'évaluation de l'ensemble s'effectue ici seulement en examinant l'évolution spatiale de l'erreur du modèle (variabilité et corrélation entre les erreurs), les résultats obtenus en examinant les diagrammes de Talagrand et de dispersion-erreur étant très similaires à ceux obtenus pour le mois de juillet 2004.

E.1 Evaluation sur la verticale

La figure E.1, illustrant la répartition verticale de l'écart-type de l'erreur de modélisation calculé à 10:00 et à 15:00 à partir de l'ensemble et à partir d'une référence (c'est-à-dire la différence entre observations et simulation de référence) corrobore les résultats obtenus pour le mois de juillet 2004 : la variabilité de la dispersion de l'ensemble est en très bon accord avec la variabilité de référence pour les trois cas, et ce quelle que soit l'altitude considérée.

La figure E.2 illustre la distribution verticale des corrélations entre les erreurs du modèle pour le groupe horaire 06:00-11:00 (G2). On retrouve des résultats similaires à ceux du mois de juillet 2004. En effet la structure des corrélations verticales est bien représentée par l'ensemble, en particulier la décroissance progressive de l'erreur entre la couche limite et la troposphère libre d'une part, et entre la troposphère libre et la région de la tropopause d'autre part. Néanmoins, les erreurs calculées à partir de l'ensemble sont encore trop corrélées. En effet, en dérivant des longueurs de corrélation, les résultats montrent que les longueurs de corrélation sont plus importantes pour l'ensemble (c.f. partie 6.4.1 pour plus d'explications).

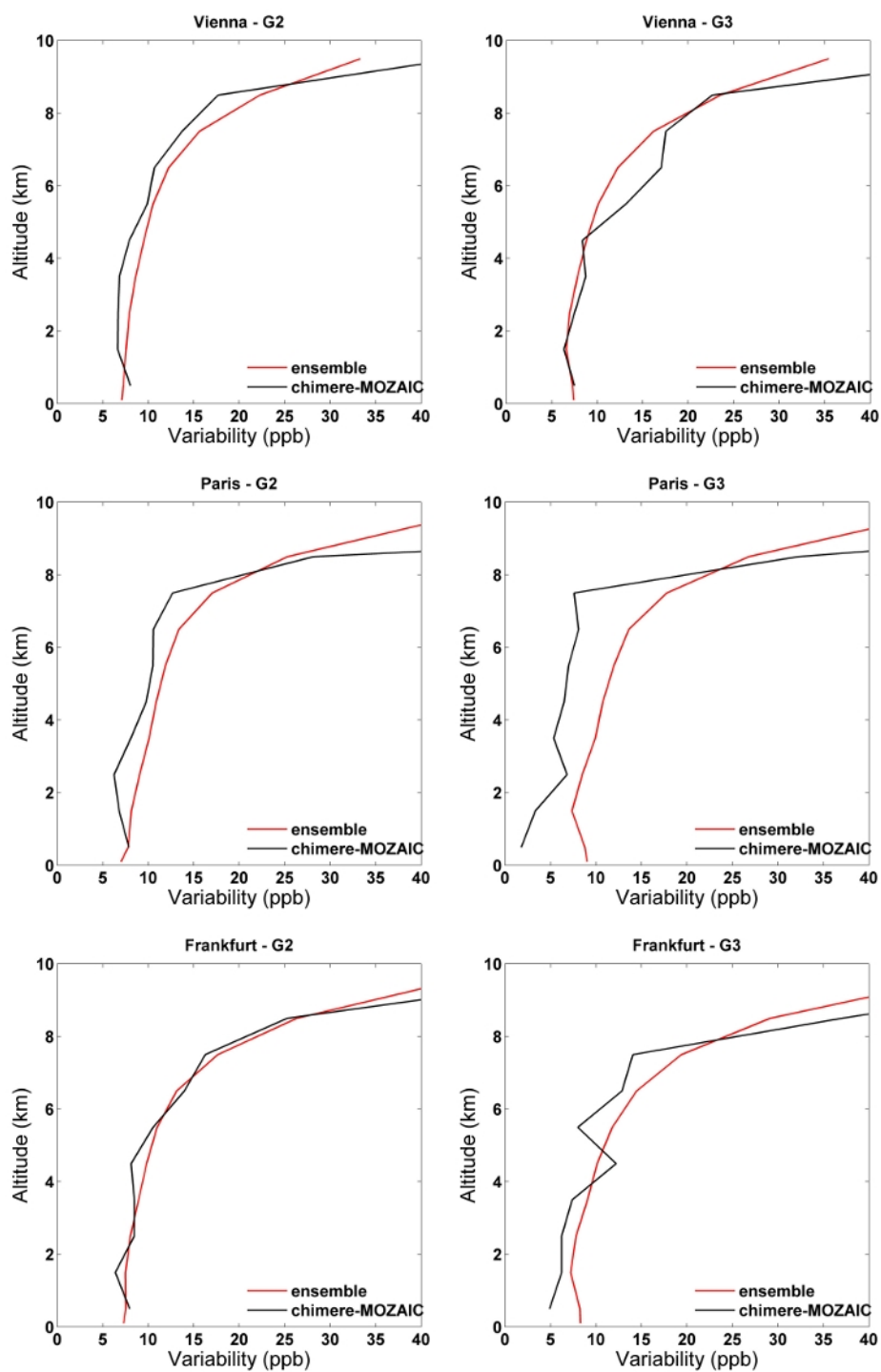


Fig. E.1 - Distribution verticale de l'écart-type de l'erreur de modèle calculé à partir de la référence (noir) et de l'ensemble "ajusté" (rouge), moyennée sur l'été 2004 pour 3 stations MOZAIC à 10:00 (gauche) et à 15:00 (droite).

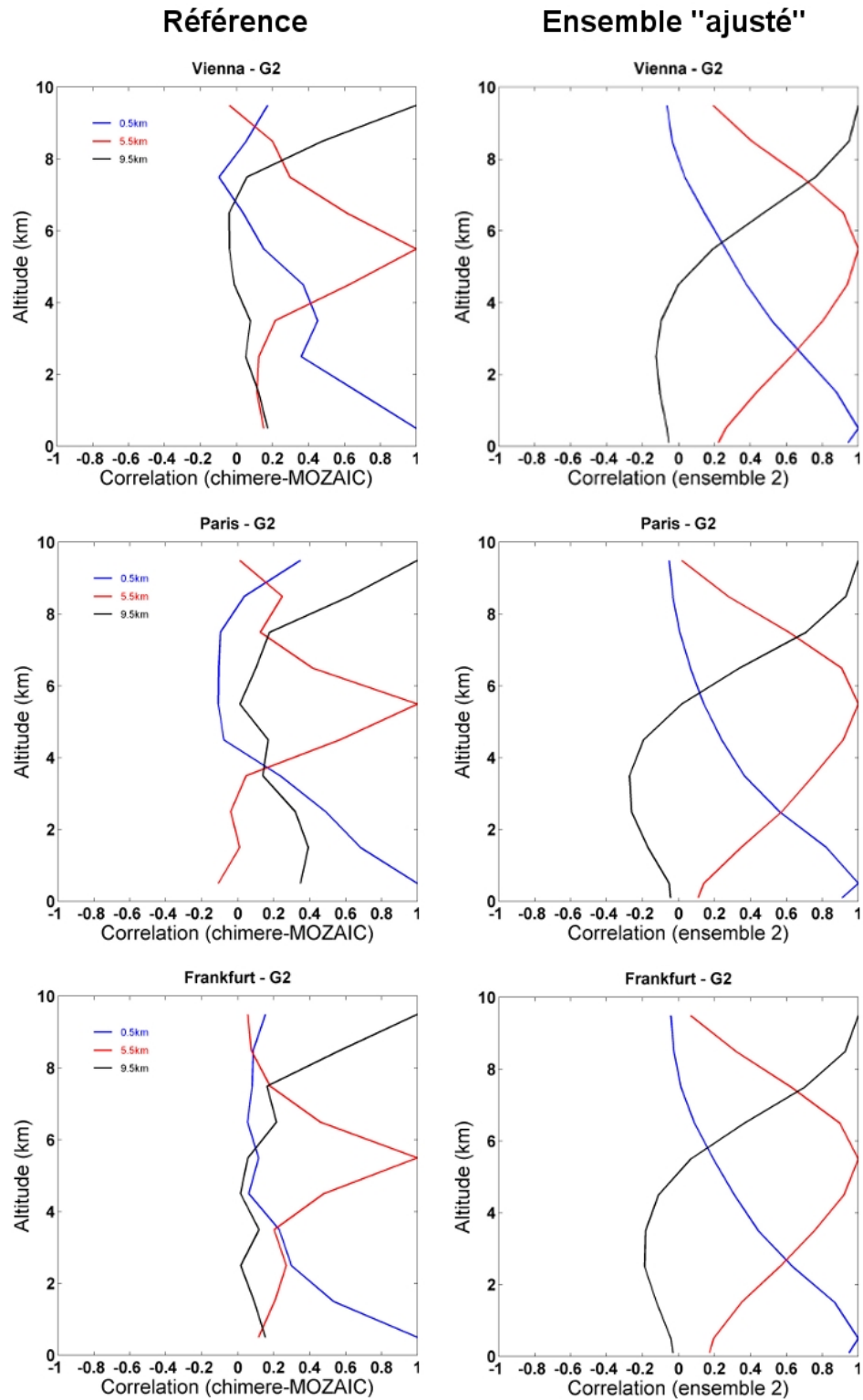


Fig. E.2 - Distributions verticales des corrélations entre les erreurs du modèle calculées à partir de la référence (gauche) et de l'ensemble "ajusté" (droite), moyennée pour l'été 2004 pour 3 stations MOZAIC pour le groupe horaire G2 (10:00).

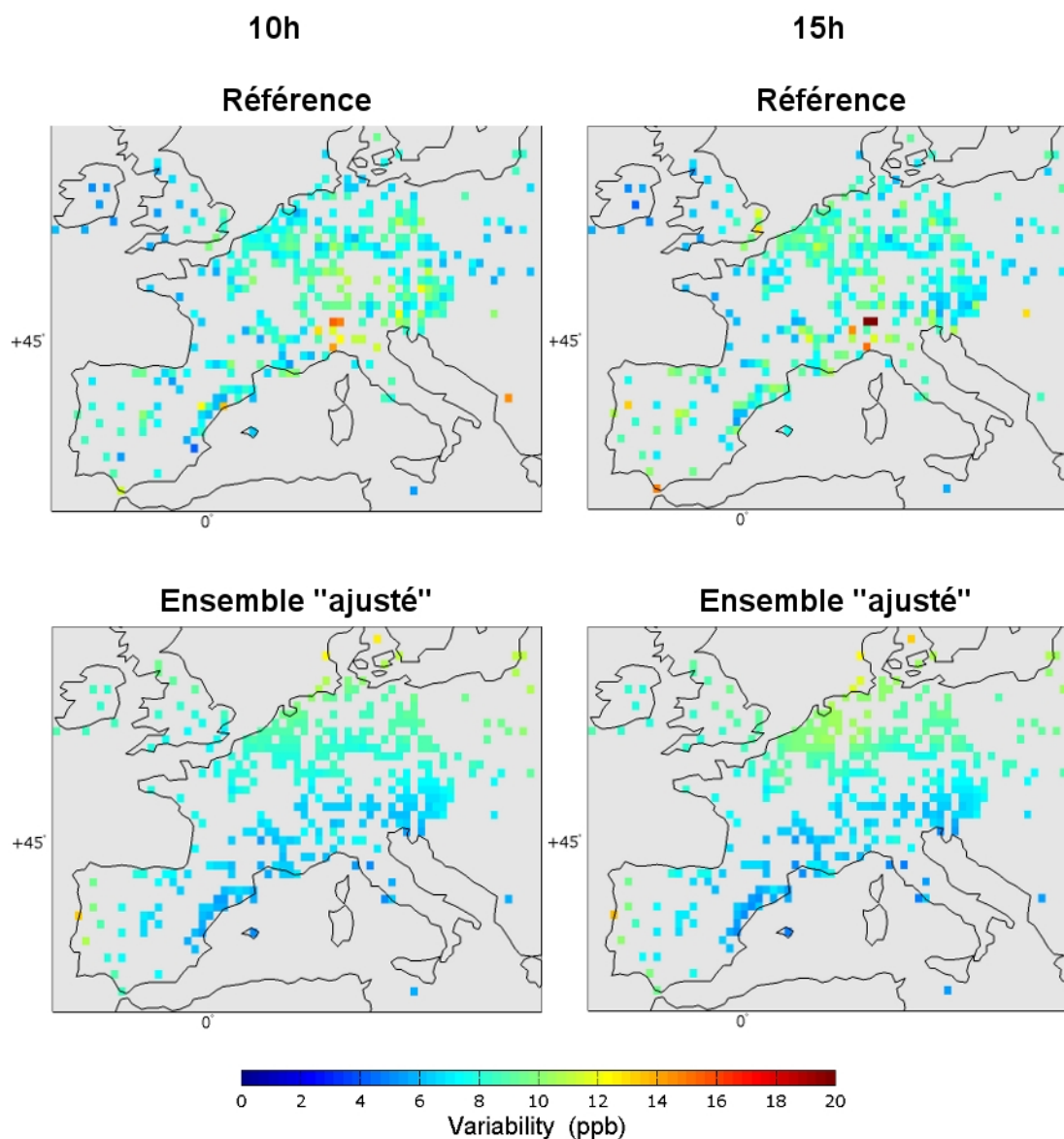


Fig. E.3 - Répartition spatiale de l'incertitude du modèle (moyenne temporelle de l'écart-type) obtenue à 10:00 (gauche) et à 15:00 (droite) pour l'été 2004 à partir de la référence et de l'ensemble "ajusté".

E.2 Evaluation à la surface

La figure E.3 présente la distribution spatiale de la variabilité des erreurs de modélisation calculée à partir de la référence et de l'ensemble "ajusté". Nous retrouvons encore une fois le même type de structure que pour juillet 2004 (c.f. partie 6.5.2).

Les corrélations horizontales entre les erreurs calculées à partir de l'ensemble et de la référence restent inchangées par rapport à juillet 2004 (c.f. figure 6.24) et ne sont donc pas présentées dans cette annexe.

Annexe F

Measurement of total and tropospheric ozone from IASI: comparison with correlative satellite, ground-based and ozonesonde observations

Measurements of total and tropospheric ozone from IASI: comparison with correlative satellite, ground-based and ozonesonde observations

A. Boynard^{1,2}, C. Clerbaux¹, P.-F. Coheur³, D. Hurtmans³, S. Turquety^{1,*}, M. George¹, J. Hadji-Lazaro¹, C. Keim²,
and J. Meyer-Arnek⁴

¹UPMC Univ. Paris 06; Université Versailles St-Quentin; CNRS/INSU, LATMOS-IPSL, Paris, France

²Université Paris 12 et 7; CNRS/INSU, Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques-IPSL, Créteil, France

³Spectroscopie de l'Atmosphère, Chimie quantique et Photophysique, Université Libre de Bruxelles (U.L.B.),
Brussels, Belgium

⁴German Aerospace Center (DLR), German Remote Sensing Data Center (DFD), Oberpfaffenhofen, Wessling, Germany

* now at: UPMC Univ. Paris 06; CNRS/INSU, Laboratoire de Météorologie Dynamique-IPSL, Paris, France

Received: 24 February 2009 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 30 April 2009

Revised: 21 July 2009 – Accepted: 28 July 2009 – Published: 31 August 2009

Abstract. In this paper, we present measurements of total and tropospheric ozone, retrieved from infrared radiance spectra recorded by the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), which was launched on board the MetOp-A European satellite in October 2006. We compare IASI total ozone columns to Global Ozone Monitoring Experiment-2 (GOME-2) observations and ground-based measurements from the Dobson and Brewer network for one full year of observations (2008). The IASI total ozone columns are shown to be in good agreement with both GOME-2 and ground-based data, with correlation coefficients of about 0.9 and 0.85, respectively. On average, IASI ozone retrievals exhibit a positive bias of about 9 DU (3.3%) compared to both GOME-2 and ground-based measurements. In addition to total ozone columns, the good spectral resolution of IASI enables the retrieval of tropospheric ozone concentrations. Comparisons of IASI tropospheric columns to 490 collocated ozone soundings available from several stations around the globe have been performed for the period of June 2007–August 2008. IASI tropospheric ozone columns compare well with sonde observations, with correlation coefficients of 0.95 and 0.77 for the [surface–6 km] and [surface–12 km] partial columns, respectively. IASI retrievals tend to overestimate the tropospheric ozone columns in comparison with ozonesonde measurements. Positive

average biases of 0.15 DU (1.2%) and 3 DU (11%) are found for the [surface–6 km] and for the [surface–12 km] partial columns respectively.

1 Introduction

Global monitoring of ozone (O_3) is essential since this molecule plays a key role in the photo-chemical equilibrium of the atmosphere. In the stratosphere, the ozone layer has a beneficial role as it absorbs harmful ultraviolet radiation. In contrast, ozone in the troposphere is considered by air quality agencies as one of the main air pollutants with significant impacts on human health and ecosystems. In addition, ozone is one of the main greenhouse gases and plays a major role in determining the oxidizing capacity of the troposphere. For all these reasons, ozone needs to be monitored with good spatial and temporal coverage in order to better understand its evolution and its impact on air quality and climate. The measurement of tropospheric ozone is best performed by ozonesondes, which provide vertical profiles from the surface to about 30–35 km, with a very high vertical resolution (~ 100 m) and an accuracy of about $\pm(5\text{--}10\%)$ (Thompson et al., 2003a, 2007; Smit et al., 2007). Soundings are performed at different locations around the globe, collected mainly in the Northern Hemisphere by the World Ozone and Ultraviolet Data Centre (WODC). The Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) provide additional soundings in the southern and tropical regions



Correspondence to: A. Boynard
(anne.boynard@latmos.ipsl.fr)

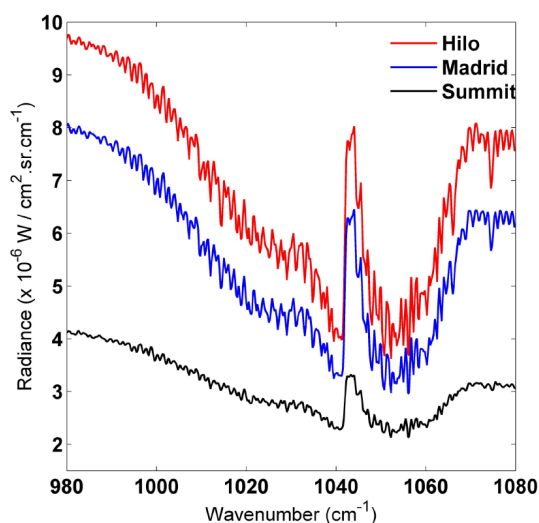


Fig. 1. Clear-sky IASI radiance spectra around the intense ozone absorption band at $9.6\ \mu\text{m}$ recorded at Hilo (Hawaii) in USA (red), Madrid in Spain (blue) and Summit in Greenland (black). Spectra are characterized by surface temperatures of 299.5, 287.1 and 255.5 K respectively.

(Thompson et al., 2003a, b, 2004, 2007), which improve the spatial coverage of the ozonesonde network. However, the coverage remains sparse and confounds attempts to generate a complete global picture of tropospheric ozone concentrations. Despite the difficulty to separate the tropospheric ozone component from the large stratospheric contribution, satellite measurements are a good way to compliment the ozonesonde observations.

The first distributions of tropospheric ozone were obtained from ultraviolet-visible (UV-vis) measurements of the Total Ozone Measurement Spectrometer (TOMS) by subtracting stratospheric ozone from total ozone (Fishman and Larsen, 1987; Fishman et al., 1990). Subsequently, several different residual-based methods have been developed to derive tropospheric ozone column from TOMS measurements (Ziemke et al., 1998; Thompson et al., 1999; Chandra et al., 2003). More recently, various approaches have been used to directly retrieve ozone profiles (and thus to derive tropospheric ozone) from the Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) measurements (Hoogen et al., 1999; Liu et al., 2005). UV-vis instruments remain by nature, however, weakly sensitive to the tropospheric ozone content.

Space-borne nadir-viewing instruments using the thermal infrared (TIR) spectral range to probe the troposphere offer maximum sensitivity in this layer with a vertical resolution of about 6 km (Coheur et al., 2005; Worden et al., 2007). The first distributions of total and tropospheric ozone have been retrieved from the Interferometric Monitor Greenhouse gases (IMG) instrument (Turquety et al., 2002, 2004; Coheur et al., 2005). However, the instrument was in operation for only 10 months in 1996 on board the Japanese ADEOS platform.

There are currently three nadir viewing TIR instruments providing ozone measurements from polar-orbiting satellites: the Atmospheric InfraRed Sounder (AIRS) on AQUA, the Tropospheric Emission Spectrometer (TES) on AURA and the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) on MetOp-A. Extended analyses, using TES and AIRS in particular have highlighted seasonal trends (Divakarla et al., 2008), enhanced pollution patterns and long-range transport (Zhang et al., 2006; Jourdain et al., 2007; Parrington et al., 2008). More recently, the enhanced capabilities of TIR sounders to probe tropospheric ozone have been used to perform an analysis of the photochemical pollution events that occurred during the 2007 summer heat wave in southern Europe, with the recently launched IASI sounder (Eremenko et al., 2008). The latter study is a first step towards the use of infrared satellite observations to monitor tropospheric ozone and to improve the forecasts of air quality and climate models.

In this paper, we present the first global distributions of IASI total ozone columns, as well as IASI tropospheric ozone measured around several ozonesonde stations. The next section provides a description of the IASI ozone measurements, including the characteristics of the instrument and the different ozone products, such as total columns and vertical profiles. In Sect. 3, the IASI total and tropospheric ozone columns are compared with correlative ozone measurements, obtained by the GOME-2 instrument also on board the MetOp-A platform, ground-based and ozonesonde data. Section 4 summarizes the study and gives some outlooks.

2 IASI ozone measurements

2.1 IASI data

The IASI instrument (Clerbaux et al., 2007, 2009) is designed to measure temperature and moisture profiles with a very high accuracy for numerical weather prediction (Schlüssel et al., 2005). It also allows the monitoring of trace gases to improve our understanding of the interactions between atmospheric chemistry, climate and pollution. It was launched on board the MetOp-A polar-orbiting satellite on 19 October 2006 and started to provide operational measurements in June 2007. IASI is a thermal infrared nadir-looking Fourier transform spectrometer that measures the Earth's surface and the atmospheric radiation over a spectral range of $645\text{--}2760\ \text{cm}^{-1}$ with a $0.5\ \text{cm}^{-1}$ spectral resolution (apodized). The ozone absorption band, near $9.6\ \mu\text{m}$, is presented in Fig. 1 as measured at three locations, representative of tropical (Hilo -Hawaii- in USA), mid-latitude (Madrid in Spain) and polar (Summit in Greenland) regions and characterized by different surface temperatures.

The IASI field of view is a matrix of 2×2 circular pixels, each with a diameter footprint of 12 km at nadir. IASI measures on average each location on the Earth's surface twice

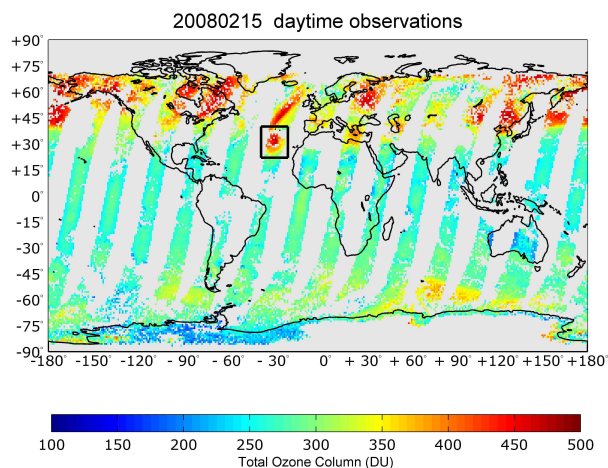


Fig. 2. Global distribution of total ozone columns obtained using the NN algorithm for daytime cloud filtered IASI observations on 15 February 2008. The data are averaged over a $1^\circ \times 1^\circ$ grid. Only measurements made with a scan angle below 32° on either side of the nadir are considered in the retrievals.

a day (at 09:30 and 21:30 local time), every 50 km at nadir, with an excellent horizontal coverage due to its polar orbit and its capability to scan across track over a swath width of 2200 km.

2.2 Ozone retrievals

Space-borne instruments record atmospheric spectra containing thousands of absorption or emission lines organized into bands. In the TIR spectral range, each spectrum results mainly from the radiative interaction between the Earth's thermal emission and the atmosphere. The absorption lines and trace gas concentrations are linked by a nonlinear function of the surface characteristics (emissivity, temperature), the temperature profile at the location of the observation, the atmospheric components interfering in the same spectral range (such as other trace gases, clouds and aerosols), as well as the instrumental characteristics, including the spectral resolution, the radiometric noise and the spectral response function. To retrieve information about the atmosphere, such as surface temperature or atmospheric trace gas concentrations from the measured radiances, an inversion algorithm needs to be applied.

Since 4 June 2007, global distributions of total ozone columns are systematically retrieved, in a quasi near real time mode, from IASI Level 1 radiances distributed by Eumetsat through the Eumetcast dissemination system, for daytime and night time measurements, using a fast neural network approach (Turquety et al., 2004). For specific cases ozone concentration profiles in the troposphere and in the stratosphere with an associated error budget are derived using a line-by-line radiative transfer model coupled to an optimal

estimation inversion scheme (Coheur et al., 2005). Diagnostic variables allowing accurate comparison with other data are also provided, in particular the averaging kernel functions $\mathbf{A} = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x}$ characterizing the sensitivity of the retrieved state \hat{x} to the true state x . The trace of \mathbf{A} represents the number of independent elements contained in the measurements, known as the degrees of freedom for signal (DOFS) which gives an estimation of the vertical sensitivity of the retrievals. The maximum sensitivity is given by the peak of the averaging kernels at a given altitude and the vertical resolution of the retrieved profiles can be evaluated by the full width at half maximum of the averaging kernel functions (Rodgers, 2000).

Retrievals are only performed for cloud-free scenes, identified using a filter based on the estimation of brightness temperatures around 11 and $12 \mu\text{m}$ and on their comparison with the surface temperature provided by the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) analyses. A more detailed description of the cloud filter is given in Clerbaux et al. (2009). The next two sections present a description of the different ozone products obtained from the IASI measurements and used for the validation work presented in this paper.

2.2.1 Total ozone global distributions

Systematic retrievals of total ozone columns are performed using an algorithm based on neural network (NN) techniques (Turquety et al., 2004). The inputs of the NN are composed of clear-sky IASI spectra and of associated surface temperature and atmospheric temperature profiles from ECMWF analyses. For a full description of the algorithm the reader is kindly referred to Turquety et al. (2004).

Figure 2 presents an example of total ozone column distributions retrieved from IASI daytime measurements made on 15 February 2008, averaged over a constant $1^\circ \times 1^\circ$ grid. Only measurements made with a scan angle below 32° on either side of the nadir are considered as the NN was not trained at larger scan angle values. This figure illustrates the capability of IASI to capture the spatial variability of the total ozone columns. Maximum columns are located at mid- and high latitudes and minimum columns are found in the tropics. On this day a remarkable feature of the total ozone columns located in the eastern Atlantic around $[35^\circ \text{N}, -30^\circ \text{E}]$ (see zone highlighted by the enclosed area) is observed by both IASI and GOME-2 (not shown). Due to a low pressure system located in the vicinity of the Canary Islands (see Fig. 3, which represents the geopotential height distribution at 200 hPa from the ECMWF analyses for that day) the tropopause height is massively decreased resulting in enhanced total ozone columns.

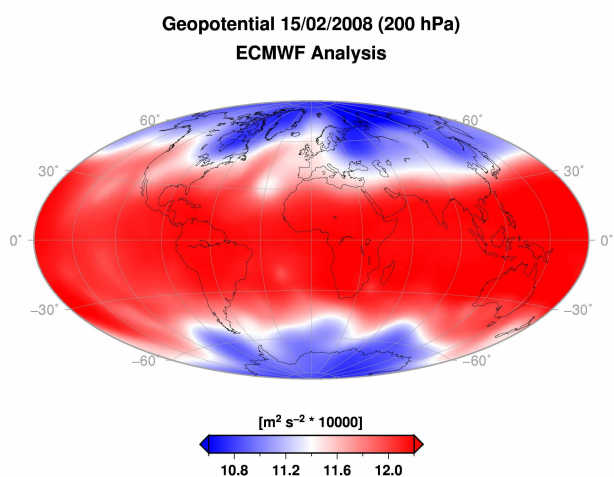


Fig. 3. Global distribution of the geopotential height at 200 hPa obtained from the ECMWF operational analyses on 15 February 2008 showing a low pressure system over the Canary Islands around [35° N, -30° E].

2.2.2 Ozone vertical profiles

Ozone vertical profiles are retrieved for specific areas, using a radiative transfer and retrieval software (Atmosphit) based on the Optimal Estimation Method (OEM) (Rodgers, 1976, 2000). This software also provides a full characterization of the retrievals in terms of vertical sensitivity and error sources, which is essential for an optimal use of satellite data. A detailed description of the method and the software can be found in Coheur et al. (2005), Wespes et al. (2007) and Clarisse et al. (2008).

As the retrieval of ozone profiles from atmospheric spectra is an ill-posed problem, one needs to constrain the inversion by additional information based on the variables being retrieved. In the OEM, this constraint consists of a priori information, which is composed of an a priori mean profile (x_a) and its associated variance-covariance matrix (S_a). These represent our knowledge of the state vector (vertical profile of ozone in our case) and its expected variability at the time and the place of the measurements. The ozone a priori profile and covariance matrix used in this work, displayed in Fig. 4a and b respectively, are derived from a set of radiosonde measurements from all over the globe (available data during the period 2004–2008) connected to the UGAMP monthly climatology (Li and Shine, Internal Report, 1995) above 30–35 km. It is thus representative of the global and annual ozone variability. Figure 4b shows higher variability in the upper troposphere and lower stratosphere between 8 and 22 km, and lower values in other altitude ranges. Near the surface, this prior information allows relatively low variability, e.g. of 10% at surface level.

In this work, the ozone profiles are retrieved in 2 km thick layers from the surface to 42 km. Surface temperature, water

vapour (H₂O) partial columns and carbon dioxide (CO₂) total columns are simultaneously adjusted. The pressure and the temperature profiles are extracted from the ECMWF analyses and are collocated with the IASI measurements.

The most useful window to measure ozone in the TIR is around 9.6 μm , where ozone lines strongly dominate the 980–1070 cm^{-1} range. Ozone retrievals are performed in the 1025–1075 cm^{-1} spectral range, in order to minimize the computation time and avoid interferences with water vapour lines. This reduced window was shown to contain all the available information for retrieving ozone profiles from thermal radiance. The spectroscopic parameters have been extracted from the HITRAN 2004 database (Rothman et al., 2005).

The measurement covariance matrix including not only the instrumental noise but also other error sources such as the uncertainties on the temperature profiles is assumed to be diagonal with each diagonal element identical and equal to σ_e . The IASI radiometric noise has been estimated at 20 $\text{nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ in the ozone retrieval spectral range (Clerbaux et al., 2009). We have no estimation for the other error sources. Optimization tests have been made to find the optimal value of σ_e . They have shown that the root mean square (RMS) of the spectral residuals (difference between the measured and the calculated spectra at the last fitting iteration) at different places and times was contained between 17 and 200 $\text{nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$. A conservative value $\sigma_e = 70 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$, of about three times the radiometric noise, was selected for the retrievals on that basis. Although it might reduce the extent of information available in some cases, this conservative approach allows the study of ozone distributions at all latitudes and seasons using the same a priori x_a and S_a information. A summary of the main retrieval settings is given in Table 1.

Figure 5 presents an example of a spectral fit and of the associated retrieved ozone profile for a case with a high total ozone column above the eastern Atlantic area identified on Fig. 2. For that case, the retrieval provides low RMS values (see residual in Fig. 5a) and the retrieval constraint was therefore relaxed to a value of 20 $\text{nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ close to the instrumental noise in order to fully exploit the available information on the vertical ozone distribution. The vertical profile for this particular observation is characterized by a secondary ozone maximum with ozone concentrations of up to $6 \times 10^{12} \text{ molecules cm}^{-3}$ at about 11 km altitude. This is consistent with the low pressure system shown in Fig. 3 which is likely to be responsible for the transport of stratospheric (ozone enriched) air masses into the tropopause region. Potential vorticity, which is a tracer of stratospheric air that is transported into the troposphere, was also examined, and corroborates our interpretation of the stratospheric intrusion.

Figure 6a presents the averaging kernel functions for this specific observation. The averaging kernels are given for 6 km thick partial columns, from the surface to 24 km. The IASI sensitivity to the ozone profile is maximal in the

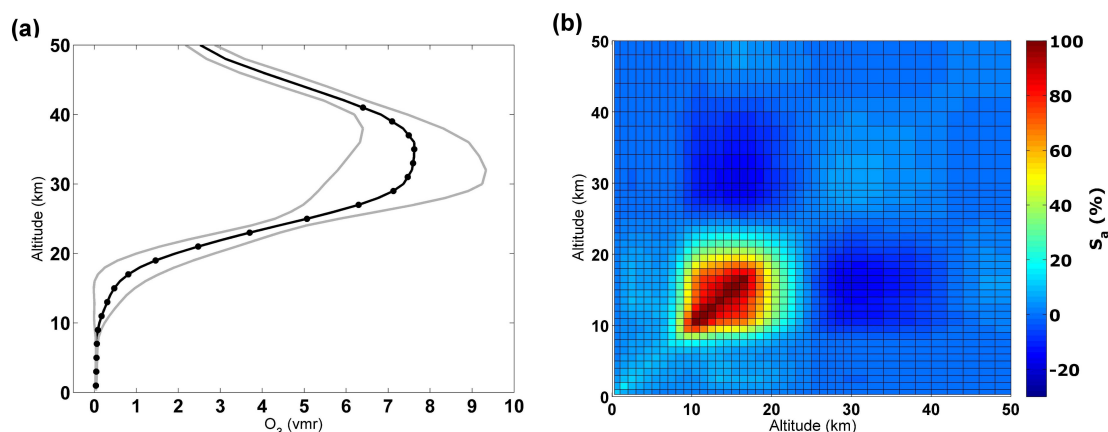


Fig. 4. (a) Global ozone a priori profile (black line) with its variability (grey lines, square root of the diagonal elements of the ozone a priori variance-covariance matrix) and the retrieval levels in black dots. (b) Global ozone a priori variance-covariance matrix (S_a) in percent built from radiosonde measurements for the period 2004–2008.

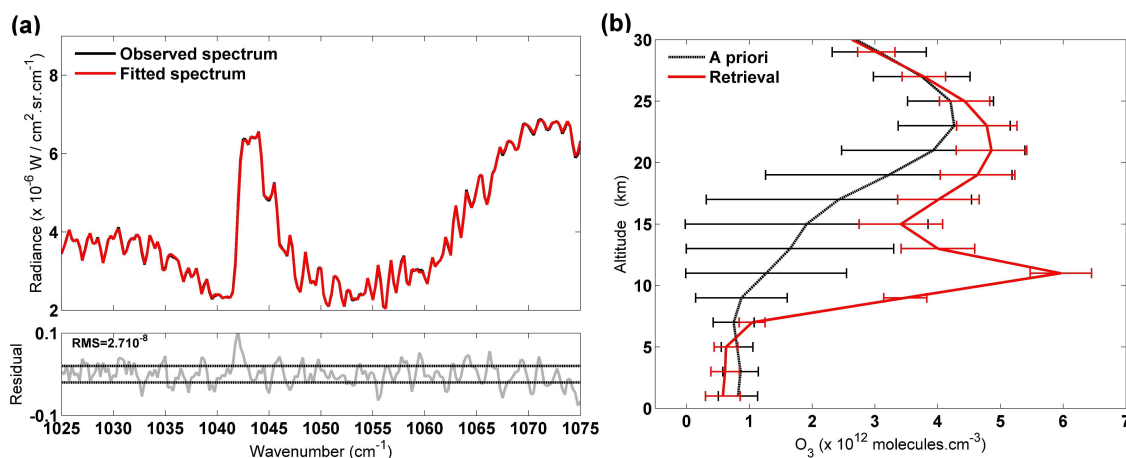


Fig. 5. (a) Spectral fit and residual for a IASI measurement made on 15 February 2008 in the eastern Atlantic (34.8° N, -29.3° E); the black lines at ± 20 nW/(cm² sr cm⁻¹) correspond to the IASI radiometric noise value used to constrain this retrieval. (b) Associated retrieved (red) and a priori (black) ozone profiles in number density units.

troposphere ([surface–12 km] column), but does not allow the separation of the two independent tropospheric components for this remote case above the ocean. This measurement, corresponding to a surface temperature of 291.4 K is characterized by a DOFS value of 3.5, which indicates that two additional columns in the upper troposphere and lower stratosphere can be retrieved independently from the tropospheric column. The thermal contrast (difference between the surface temperature and the temperature of the first atmospheric vertical layer) was calculated, and a value of 2.4 K was found, which is relatively unfavourable for tropospheric sounding in the TIR. Better information in the lower troposphere is expected in the case of high positive thermal contrast which interestingly accompanies frequent photochemical pollution events (Eremenko et al., 2008). As emphasized in other papers (Deeter et al., 2007; Clerbaux et al., 2009)

DOFS numbers depend on both surface temperature and thermal contrast which in turn depend on surface type.

The associated error budget in Fig. 6b highlights the dominance of the smoothing error to the budget, with the measurement error and the errors introduced by the uncertainties on the temperature profile also contributing to some extent. Error sources due to the simultaneous retrievals of surface properties (temperature and emissivity) and constituent concentrations such as H₂O and CO₂ contribute weakly and are not shown. The total error varies from 25 to 50% for each individually retrieved level of the profile. The errors are maximum around 10–15 km due to the tropopause variability. At all altitudes between 2 and 25 km however, there is an important reduction of errors compared to the a priori variability, showing the extent of information provided by the measurements.

Table 1. Summary of the retrieval settings.

Spectral window	1025–1075 cm ⁻¹
Spectroscopic database	HITRAN 2004
A priori (x_a , S_a)	Ozone profile from 2004 to 2008 connected to the UGAMP climatology
Pressure, Temperature profiles	ECMWF
Instrumental noise	70 nW/(cm ² sr cm ⁻¹)
Adjusted parameters	O ₃ , surface temperature, H ₂ O and CO ₂

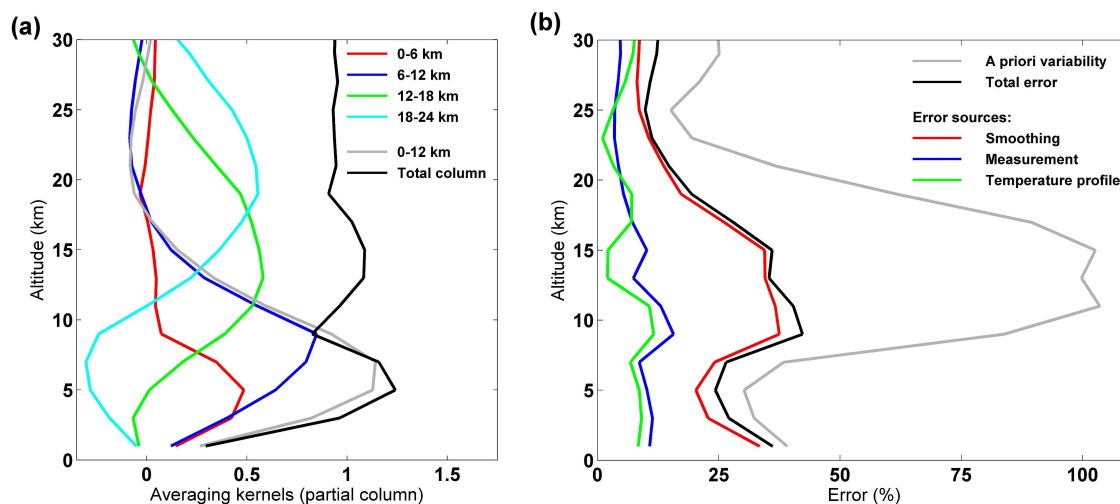


Fig. 6. (a) Averaging kernel functions for the [surface–6], [6–12], [12–18], and [18–24] km partial columns characterizing the retrieval shown in Fig. 4. The averaging kernel associated with the [surface–12] km tropospheric column is also shown. The black curve represents the integrated measurement response. (b) Associated error budget. The a priori variability and total errors are given by the square root of the diagonal elements of the a priori covariance matrix and the error covariance matrix, respectively. The contributions of the surface properties (surface temperature and emissivity), H₂O and CO₂ columns are not shown.

3 Validation with available data

3.1 Total ozone

IASI total ozone column validation was performed using two sets of data: satellite data from the GOME-2 instrument and ground-based data from the Dobson and Brewer network.

3.1.1 Comparisons with GOME-2 measurements

The GOME-2 instrument, also placed aboard the MetOp-A platform is designed to continuously monitor the abundance, distribution and variability of ozone and associated species. GOME-2 is a UV-vis cross-track nadir viewing spectrometer covering the range from 240 to 790 nm. Its field of view may be varied in size from 5 km×40 km to 80 km×40 km (default). The maximum swath is about 1920 km providing almost daily global coverage at the equator.

The retrievals of total ozone columns from GOME-2 measurements are based on the GOME Data Processor (GDP) operational algorithm which is a classical DOAS-AMF fitting algorithm. More details on the algorithm can be found in Van Roozendael et al. (2006).

GOME-2 total ozone columns provided by the DLR are available in near real time since the 30 March 2007, through Eumetcast. A initial validation with one full year of ground-based and satellite measurements shows that GOME-2 total ozone products have already reached an excellent quality (Balis et al., Validation report, 2008, can be obtained from: <http://wdc.dlr.de/sensors/gome2/>).

For the validation of IASI total ozone column retrievals, IASI and GOME-2 total ozone column distributions were averaged over a constant 1°×1° grid and compared over the whole year of 2008. As the UV-vis instrument provides daytime observations, only the IASI daytime measurements are compared. Figure 7 shows the seasonal global distributions of total ozone columns derived from the IASI NN retrievals compared to the GOME-2 data. Globally and seasonally both instruments observe similar structures for the total ozone columns as a function of latitude. As expected, maximum columns are observed at high latitudes whereas the minimum columns are generally located in the tropical regions (except for the ozone hole seasons). The annual ozone depletion over the Antarctic for the July–August–September and October–November–December periods is also well observed by both instruments.

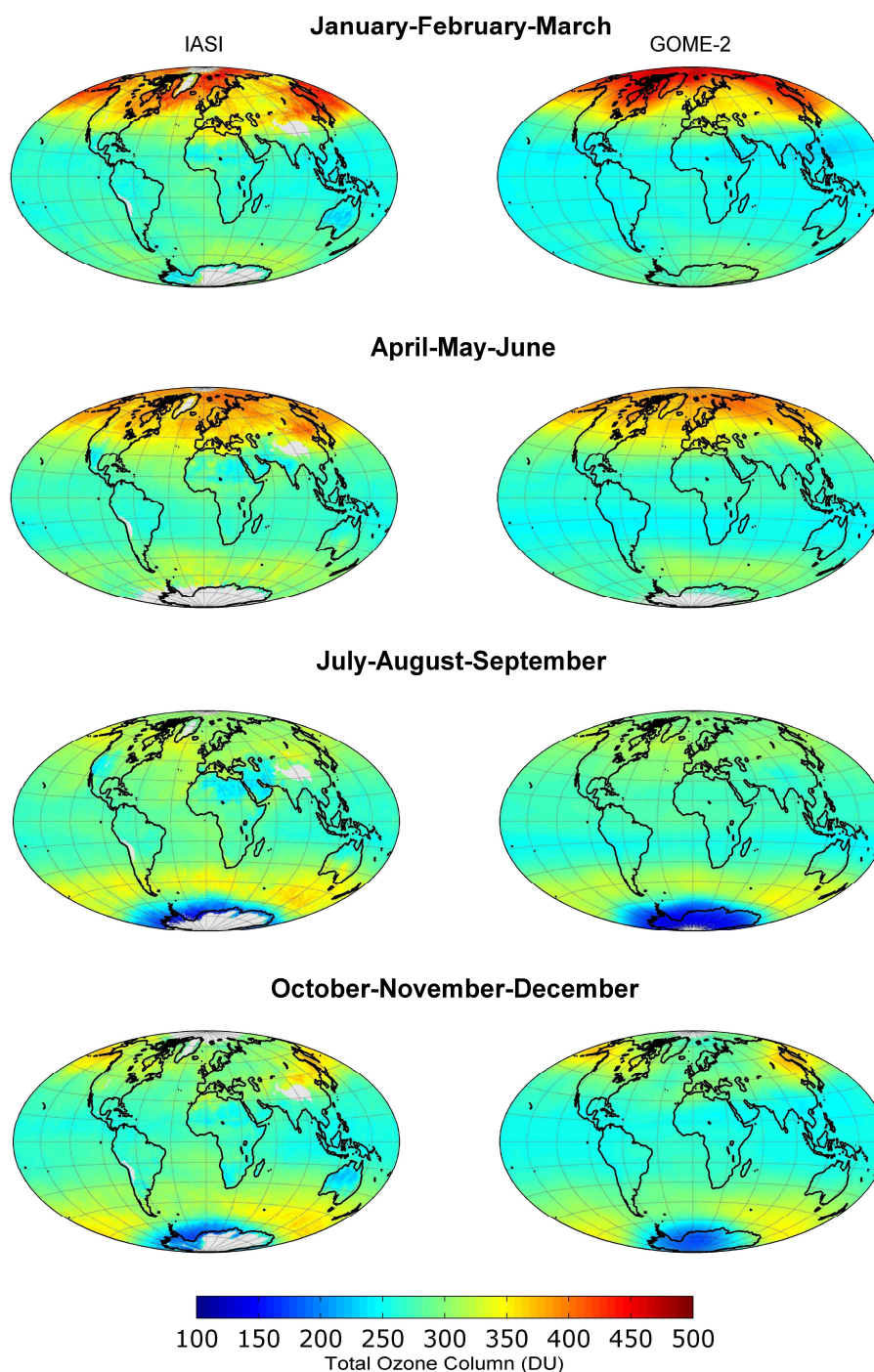


Fig. 7. Global distributions for three months averaged periods ($1^\circ \times 1^\circ$ grid): (left) IASI total ozone columns compared to (right) GOME-2 retrieved total ozone columns for daytime measurements. On the IASI maps, grey areas correspond to data recorded over topography (altitude higher than 2 km) that have been filtered out.

A statistical comparison has been performed between the total ozone columns retrieved from IASI and GOME-2 separately for each season, at global scale and for five different latitude zones (Fig. 8). The correlation coefficient, the bias of the mean and the standard deviation (or RMS error)

from these comparisons are summarized in Table 2. Over the globe, the agreement between the two distributions is very good, with correlation coefficients ranging from 0.92 to 0.98 and an RMS error of 9.7 to 28.2 DU depending on the seasons. This comparison also highlights an overestimate of the

Table 2. Summary of the correlation, the bias and the (1σ) standard deviation (RMS) of the IASI total ozone column relative to the GOME-2 data, for each season. The bias and the standard deviation are given in Dobson units.

	Jan-Feb-Mar		Apr-May-Jun		Jul-Aug-Sep		Oct-Nov-Dec	
	Corr coef	Bias (1σ)	Corr coef	Bias (1σ)	Corr coef	Bias (1σ)	Corr coef	Bias (1σ)
All latitudes	0.92	4.9 (28.2)	0.98	13.0 (9.7)	0.95	10.3 (11.6)	0.92	8.6 (13.3)
60° N–90° N	0.39	−44.0 (36.8)	0.78	9.2 (8.5)	0.85	9.9 (4.8)	0.74	9.8 (13.9)
30° N–60° N	0.90	13.0 (19.6)	0.92	16.3 (11.3)	0.77	9.1 (12.9)	0.90	9.7 (12.4)
30° S–30° N	0.72	17.3 (9.9)	0.73	12.2 (9.3)	0.49	10.5 (12.1)	0.69	11.5 (9.8)
60° S–30° S	0.93	15.6 (4.9)	0.49	14.3 (5.4)	0.94	13.0 (6.7)	0.95	10.2 (6.5)
90° S–60° S	0.57	−1.0 (17.8)	0.69	13.8 (15.4)	0.92	7.8 (19.8)	0.91	−5.8 (20.6)

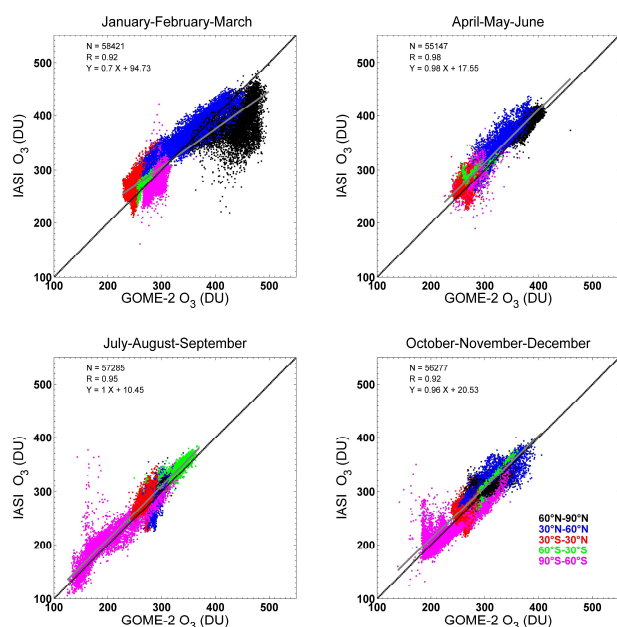


Fig. 8. Scatter plots of the IASI and GOME-2 total ozone columns for three months averaged periods (Jan-Feb-Mar, Apr-May-Jun, Jul-Aug-Sep, Oct-Nov-Dec). The plots show averaged data over a $1^\circ \times 1^\circ$ grid. The shaded line represents the linear regressions between all data points and the black line, of unity slope, is shown for reference.

IASI total ozone columns with respect to GOME-2 (positive bias ranging from 4.9 DU (2.9%) to 13 DU (4.4%)). On average over the year, the bias value is around 9 DU ($\sim 3\%$) which is in the same order of magnitude as that found by Osterman et al. (2008) for TES total ozone columns compared to OMI data. The detailed analysis undertaken for different latitude bands shows that the bias may be negative, e.g. at high latitudes. In particular, in the winter northern polar regions, comparisons between IASI and GOME-2 total ozone show the largest bias (−44.0 DU), RMS error (36.8 DU) and the lowest correlation coefficient (0.39) of all seasons. The highest correlation coefficients are found in the mid-latitude regions, with values higher than 0.9, except for the summer northern and the autumn southern mid-latitude regions where

the correlation coefficients are lower. In order to examine precisely the regions characterized by larger discrepancies, relative differences between IASI and GOME-2 total ozone columns have been calculated for each season and are shown in Fig. 9. Globally relative differences do not exceed 15% and no significant latitudinal dependence is apparent. Although more efforts are obviously required to fully understand local discrepancies, it is partly attributable to the different observation modes. First the instruments have a different footprint on the ground (12 km for IASI (circular), 40×80 km for GOME-2) and are hence subject to different cloud contamination. Secondly, the geometry of the observation differs, which implies that different air masses are probed. Moreover, the prior information used in both retrieval algorithms is different. Finally, the two instruments are characterized by different weighting functions and have different vertical sensitivities. GOME-2 has a maximum sensitivity in the stratosphere, while IASI presents a maximum sensitivity in the free troposphere. The largest differences observed at high latitudes are attributed to the low signal noise ratio recorded by the IASI instrument especially in the winter northern polar regions but also to the degradation of the GOME-2 precision at higher solar zenith angles in these regions. In the tropics, the largest differences are observed above regions characterized by extreme emissivities, such as sandy surfaces (e.g. Sahara, Middle East), that are not accounted for in the IASI near-real-time processing chain using the NN. Another plausible source of discrepancy in these areas might come from the presence of aerosols (e.g. above western Africa for the first trimester).

3.1.2 Comparisons with ground-based measurements

The ground-based total ozone data used in this study are from Dobson and Brewer UV spectrophotometer measurements. Total ozone can be derived from direct sun, zenith sky or focused moon observations at different wavelengths. The Dobson instrument, originally developed in the 1920s (Dobson, 1931), uses four wavelengths (two pairs) to determine total ozone quantities. The most commonly used pairs are the AD double pair (305.5/325.5 nm and 317.6/339.8 nm)

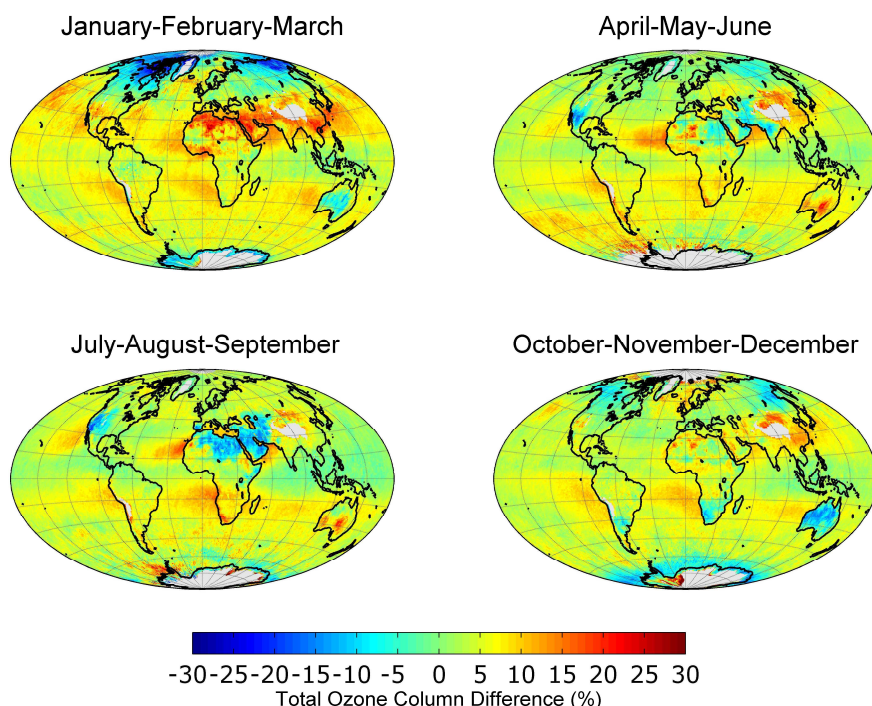


Fig. 9. Relative differences between IASI and GOME-2 total ozone columns for daytime measurements and for three month averaged periods ($1^\circ \times 1^\circ$ grid). The relative differences are calculated according to: $100 \times (\text{IASI} - \text{GOME2}) / \text{GOME2}$.

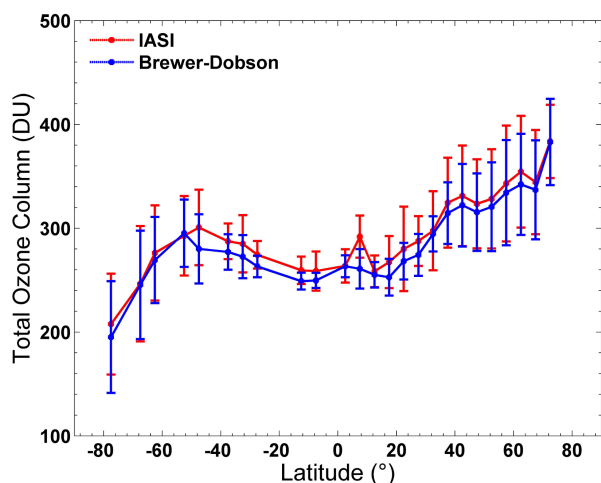


Fig. 10. Total ozone columns derived from collocated IASI and ground-based measurements with associated standard deviations, zonally averaged for 2008.

and the CD pair (311.45/332.4 nm and 317.6/339.8 nm). The Brewer spectrophotometer, available since the early eighties (Brewer, 1973) relies on the same principle as the Dobson instrument, however, the instrument uses several wavelength pairs from five wavelengths between 306.3 and 320.1 nm to derive total ozone. Both Dobson and Brewer instruments

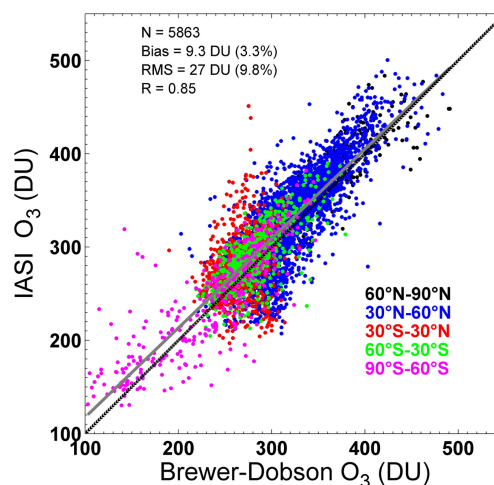


Fig. 11. Scatter plots of the IASI and ground-based total ozone columns for 2008. The correlation, bias, standard deviation and number of collocated observations are also indicated on the top of the figure. The shaded line represents the linear regressions between all data points and the black line, of unity slope, is shown for reference. The bias (in relative value) is calculated according to: $100 \times (\text{IASI} - \text{ground-based}) / \text{ground-based}$.

Table 3. List of Brewer stations used for the ozone validation.

WMO station number	Station name (country)	Latitude, ° N	Longitude, ° E	Height, m
262	Sodankyla (Finland)	67.34	26.51	179
284	Vindeln (Switzerland)	64.24	19.77	225
165	Oslo (Norway)	59.91	10.72	90
279	Norrkoeping (Switzerland)	58.58	16.15	43
352	Manchester (Great Britain)	53.48	−2.23	76
174	Lindenberg (Germany)	52.21	14.12	112
316	De Bilt (Netherlands)	52.10	5.18	9.5
318	Valentia Observatory (Ireland)	51.93	−10.25	14
353	Reading (Great Britain)	51.45	−0.93	66
53	Uccle (Belgium)	50.80	4.35	100
96	Hradec Kralove (Czech Republic)	50.18	15.83	285
331	Poprad-Ganovce (Slovakia)	49.03	20.32	706
99	Hohenpeissenberg (Germany)	47.80	11.02	975
100	Budapest-Lorinc (Hungary)	47.43	19.18	139
35	Arosa (Switzerland)	46.78	9.68	1840
326	Longfengshan (China)	44.73	127.60	317
405	La Coruda (Spain)	43.33	−8.47	62
411	Zaragoza (Spain)	41.63	−0.91	250
308	Madrid/Barajas (Spain)	40.46	−3.65	650
348	Ankara (Turkey)	39.95	32.88	896
447	Goddard (USA)	38.99	−76.83	100
346	Murcia (Spain)	38.00	−1.17	69
213	El Arenosillo (Spain)	37.10	−6.73	41
295	Mt. Waliguan (China)	36.29	100.90	3810
332	Pohang (Korea)	36.03	129.38	6
336	Isfahan (Iran)	32.48	51.43	1550
376	Mrsa Matrouh (Egypt)	31.33	27.22	35
349	Lhasa (China)	29.67	91.13	3640
10	New Delhi (India)	28.49	77.16	247.5
95	Taipei (Taiwan)	25.02	121.48	25
30	Minamitorishima (Japan)	24.30	153.97	9
468	Cape d'Aguilar (Hong Kong)	22.21	114.26	60
187	Poona (India)	18.53	73.85	559
322	Petaling Jaya (Malaysia)	3.10	101.65	61
475	Bandung (India)	−6.90	107.58	731
473	Punta Arenas (Chile)	−53.14	−70.88	3
351	King George Island (Uruguay)	−62.18	−58.90	10
454	San Martin (Argentina)	−68.13	−67.10	30
314	Belgrano II (Argentina)	−77.87	−34.63	255

present similar performances (Kerr et al., 1988). The Dobson and Brewer total ozone measurements have already been used for the validation of satellite derived total ozone measurements (Weber et al., 2005; Balis et al., 2007).

For the comparisons with IASI total ozone columns, we used all the Dobson and Brewer data derived from direct sun and zenith sky observations available for 2008 from the WOUDC archives. The data format currently used consists of daily total ozone values expressed in Dobson units. We set the coincidence criteria to 0.5° radius from the ground-based station and to the same day of observation. IASI measurements collocated to ground-based measure-

ments were then averaged. 39 Brewer and 50 Dobson stations were considered for the comparison. The stations are summarized in Tables 3 and 4.

Figure 10 shows the collocated total ozone distributions averaged over 5° latitude bands for the year 2008. A positive bias between the two distributions is apparent, with larger differences at mid- and low latitudes, in particular in the Southern Hemisphere. The variability associated with IASI total ozone columns is somewhat larger than that of the ground-based measurements, except at high latitudes where the latter increases.

Table 4. List of Dobson stations used for the ozone validation.

WMO station number	Station name (country)	Latitude, ° N	Longitude, ° E	Height, m
105	Fairbanks (college) (USA)	64.82	−147.87	138
43	Lerwick (Great Britain)	60.13	−1.18	80
53	Uccle (Belgium)	50.80	4.35	100
96	Hadrec Kralove (Czech Republic)	50.18	15.83	285
99	Hohenpeissenberg (Germany)	47.80	11.02	975
20	Caribou (USA)	46.87	−68.03	192
35	Arosa (Switzerland)	46.78	9.68	1840
19	Bismarck (USA)	46.77	−100.75	511
40	Haute Provence (France)	43.93	5.70	674
474	Lannemezan (France)	43.13	0.37	597
12	Sapporo (Japan)	43.06	141.33	19
410	Amberd (Armenia)	40.38	44.25	2070
67	Boulder (USA)	40.09	−105.25	1689
208	Xianghe (China)	39.98	116.37	80
293	Athens (Greece)	37.98	23.75	195
107	Wallops Island (USA)	37.90	−75.48	13
252	Seoul (Korea)	37.57	126.95	84
213	El Arenosillo (Spain)	37.10	−6.73	41
341	Hanford (USA)	36.32	−119.63	73
106	Nashville (USA)	36.25	−86.57	182
14	Tateno/Tsukuba (Japan)	36.06	140.10	31
464	University of Tehran (Iran)	35.73	51.38	1419
152	Cairo (Egypt)	30.08	31.28	37
10	New Delhi (India)	28.49	77.16	247.5
409	Hurghada (Egypt)	27.28	33.75	7
190	Naha (Japan)	26.20	127.68	27
74	Varanasi (India)	25.32	83.03	76
209	Kunming (China)	25.03	102.68	1917
245	Aswan (Egypt)	23.97	32.78	193
2	Tamanrasset (Algeria)	22.80	5.52	1377
31	Mauna Loa (USA)	19.53	−155.57	3405
218	Manila (Phillipin)	14.63	121.43	61
216	Bangkok (Siam)	13.67	100.61	53
317	Lagos (Nigeria)	6.60	3.33	10
214	Singapore (Singapore)	1.33	103.88	14
84	Darwin (Australia)	−12.42	130.88	31
191	Samoa (USA)	−14.25	−170.56	82
27	Brisbane (Australia)	−27.42	153.12	3
343	Salto (Uruguay)	−31.40	−57.97	31
159	Perth (Australia)	−31.92	115.95	2
91	Buenos Aires (Argentina)	−34.58	−58.48	25
253	Melbourne (Australia)	−37.74	144.90	128.5
256	Lauder (New Zealand)	−45.03	169.68	370
342	Comodoro Rivadavia (Argentina)	−45.78	−67.50	43
29	Macquarie Island (Australia)	−54.50	158.97	6
339	Ushuaia (Argentina)	−54.85	−68.31	15
233	Marambio (Argentina)	−64.23	−56.62	196
101	Syowa (Japan)	−69.00	39.58	21
268	Mcmurdo (Argentina)	−77.83	166.66	215
111	Amundsen-Scott (Argentina)	−89.98	0.00	2820

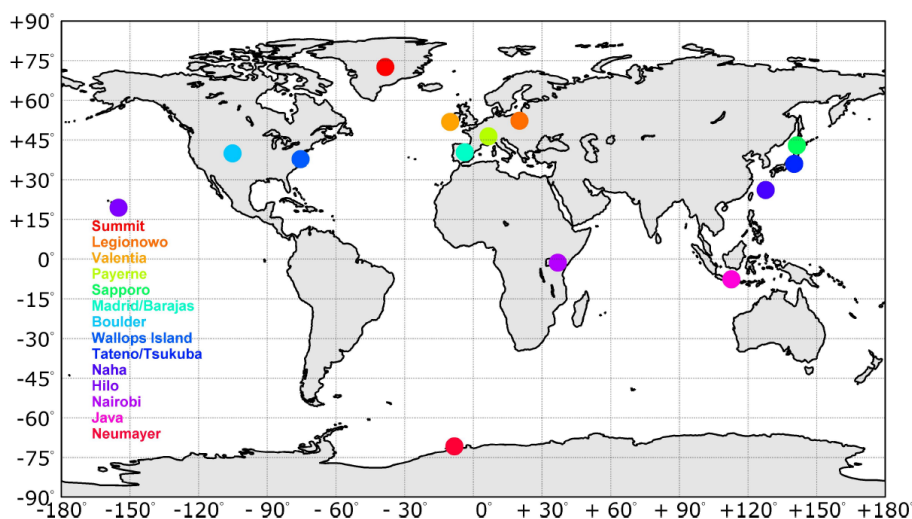


Fig. 12. Geographic locations of the fourteen ozonesonde validation stations used in this study.

A statistical comparison of the columns is represented for the year 2008 in Fig. 11. The correlation, bias, standard deviation and number of collocated observations are also indicated. Globally and on average over the year, the agreement between the two distributions is good with a correlation of 0.85, a bias value of about 9.3 DU ($\sim 3\%$) and an RMS error of 27 DU (9.8%).

These values are consistent with those found for the comparison with GOME-2 measurements. As mentioned in Sect. 3.1.1, the bias observed are partly attributed to the different observation methods used.

3.2 Tropospheric ozone

To analyze the IASI tropospheric ozone columns, high vertical resolution profiles measured by ozonesondes have been used. Ozonesonde measurements were obtained from the Woudc, SHADOZ and the Global Monitoring Division (GMD) of NOAA's Earth System Research Laboratory archives. We selected fourteen stations representative of different latitudes, including mid-latitude, polar and tropical regions which provide observations collocated to IASI measurements within a square of 110 km length and temporal coincidence of 12 h (Fig. 12 and Table 5). More details on the selection criteria are given in Keim et al. (2009) who report on an algorithm inter-comparison of ozone retrievals from the IASI radiance data (including Atmosphit, used in the present analysis).

After the retrievals, noisy spectra are filtered out using a filter based on the RMS of the spectral residuals. We only keep spectra which have an RMS value lower than twice the value used to constrain the retrievals. We also only take into account sonde profiles collocated to at least four IASI profiles, which are then averaged. After selection, the validation of IASI tropospheric ozone columns is performed

on a set of 490 sonde measurements and 4028 coincident clear-sky IASI observations during a period extending from June 2007 to August 2008.

The sonde measurements need to be smoothed (Rodgers and Connor, 2003) according to the averaging kernel matrix of the IASI retrievals in order to take into account the different vertical resolutions and to allow a meaningful comparison with the retrieved ozone profiles, using:

$$\mathbf{x}_s = \mathbf{x}_a + \mathbf{A}(\mathbf{x}_{\text{sonde}} - \mathbf{x}_a) \quad (1)$$

where $\mathbf{x}_{\text{sonde}}$ is the measured ozonesonde profile, and \mathbf{x}_s is the smoothed ozonesonde profile.

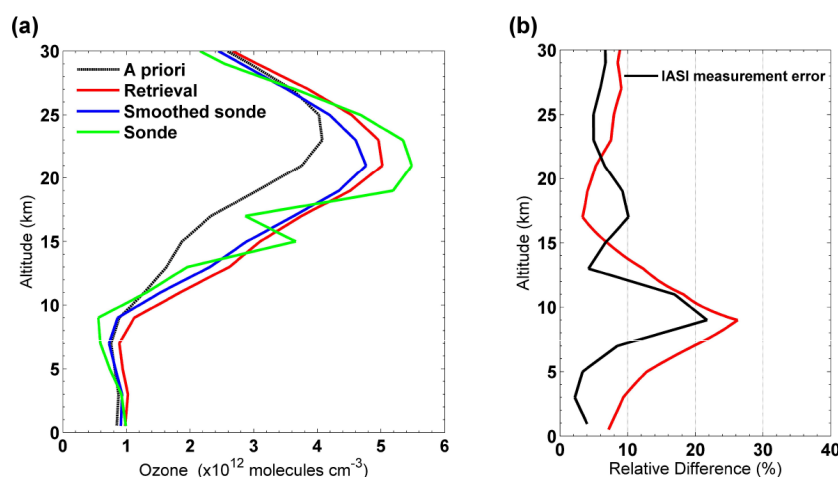
As the sondes provide ozone profiles only up to about 30–35 km, ozonesonde profiles were connected to the a priori profile higher up.

An example of a comparison between a IASI retrieval and an ozonesonde profile is provided in Fig. 13a, for a IASI measurement point located near the Legionowo station in Poland. The figure demonstrates that the retrieved profile is in good agreement with the sonde profile, in particular with the lower stratospheric part, initially far from the sonde, being nicely captured. For this example, the relative differences with respect to the smoothed ozonesonde measurements shown in Fig. 13b do not exceed 30% over the entire altitude range from the surface to 30 km. The figure also shows that the IASI measurement error is lower than the differences between both profiles.

A statistical validation of the IASI tropospheric columns with respect to the sondes is provided in Fig. 14. We compare separately two partial columns, corresponding to the integrated [surface–6 km] and [surface–12 km] layers. It is worth noting that the tropopause level is not fixed and ozone from the surface to 12 km may include some stratospheric ozone, especially at high latitudes. For the

Table 5. Ozonesonde station locations, altitudes, data providers, and the number of coincidences used for the ozone validation.

Ozonesonde Station	Latitude, ° N	Longitude, ° E	Altitude, m	Data Source	Number of Sondes data
Summit (Greenland)	72.57	−38.48	3211	GMD	37
STN221 (Legionowo, Poland)	52.40	20.97	96	WOUDC	33
STN318 (Valentia Observatory, Ireland)	51.93	−10.25	14	WOUDC	43
STN156 (Payerne, Switzerland)	46.49	6.57	491	WOUDC	95
STN012 (Sapporo, Japan)	43.06	141.33	19	WOUDC	27
STN308 (Madrid/Barajas, Spain)	40.46	−3.65	650	WOUDC	37
Boulder (USA)	40.00	−105.25	1743	GMD	33
STN107 (Wallops Island, USA)	37.90	−75.48	13	WOUDC	40
STN014 (Tateno/Tsukuba, Japan)	36.06	140.10	31	WOUDC	40
STN190 (Naha, Japan)	26.20	127.68	27	WOUDC	24
Hilo (Hawaii, USA)	19.43	−155.04	11	GMD	31
Nairobi (Kenya)	−1.27	36.80	1795	SHADOZ	19
Java (Indonesia)	−7.50	112.60	50	SHADOZ	5
STN323 (Neumayer, Antarctic)	−70.65	−8.25	42	WOUDC	26

**Fig. 13.** (a) Example of retrieved ozone profile from a IASI observation made on 9 January 2008 at Legionowo station in Poland (52.40° N, 20.97° E), with the sonde profile measured at this station (before and after smoothing). (b) Relative differences (red) calculated with respect to the smoothed sonde profile. The IASI measurement error (black) is also shown.

comparisons, the sonde columns are smoothed by the corresponding merged averaging kernels from the IASI retrieval (Eq. 1). Globally, the agreement is very satisfactory for both columns with a correlation coefficient of 0.95 and 0.77 for the [surface–6 km] and the [surface–12 km] partial columns respectively. The dynamical range of concentrations is well reproduced even for the lowest columns, unlike previous observations with other sounders (Coheur et al., 2005). IASI retrievals tend to overestimate the tropospheric ozone columns with respect to the sonde measurements. A slight bias of 0.15 DU (1.2%) is found for the [surface–6 km] partial column while the [surface–12 km] partial column shows a bias of 3 DU (11%). Comparisons between ozonesondes and TES tropospheric ozone retrievals also highlight a tendency to overestimate ozone (by 4 DU for TES v2 data) (Osterman et al., 2008). Similar results are found in Nassar et al. (2008).

Table 6 gives a more detailed comparison, sorted by region, altitude, and season. It is worth noting that some values may not be significant because of the poor number of available data (as indicated). It can be seen that the altitude has an impact on the [surface–6 km] partial columns, and the agreement is better for stations located at high altitudes. This is due to the sensitivity of IASI which is maximum in the free troposphere but generally low near the surface. This impact is not observed for the [surface–12 km] partial columns. Comparisons by latitude can not be undertaken as there is not enough data, in particular at high and low latitudes. At the global scale, the agreement between IASI and ozonesonde partial columns is better for the April–May–June and July–August–September periods.

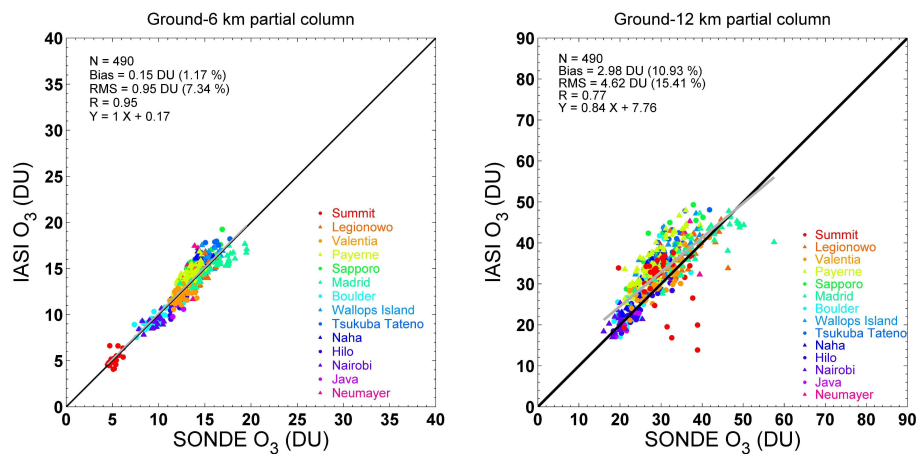


Fig. 14. Scatter plots of the IASI and sonde tropospheric ozone columns for the June 2007–August 2008 period. The shaded line represents the linear regressions between all data points and the black line, of unity slope, is shown for reference. The bias (in relative value) is calculated according to: $100 \cdot (\text{IASI} - \text{SONDE}) / \text{SONDE}$.

Table 6. Summary of the correlation, the bias and the (1σ) standard deviation (RMS) of the IASI tropospheric ozone column relative to the ground-based data segregated into high/mid and tropical latitudes, as well as, all available data at and above sea level, for each season. The bias and the standard deviation are given in Dobson units.

	Jan-Feb-Mar		Apr-May-Jun		Jul-Aug-Sep		Oct-Nov-Dec	
	Corr coef	Bias (1σ)	Corr coef	Bias (1σ)	Corr coef	Bias (1σ)	Corr coef	Bias (1σ)
[surface–6 km] partial column								
All latitudes	0.94	0.06 (0.96)	0.97	−0.22 (0.90)	0.95	−0.11 (0.94)	0.84	0.39 (1.03)
High latitudes	0.99 ¹	−0.09 (0.77)	1.00 ¹	0.01 (0.41)	0.97 ¹	0.35 (1.18)	0.53 ¹	0.54 (0.80)
Mid-latitudes	0.89	0.18 (0.96)	0.91	−0.28 (0.93)	0.92	−0.06 (0.80)	0.92	0.53 (0.78)
Tropics	0.96 ¹	−0.82 (0.78)	0.93	−0.18 (1.03)	0.83	−0.65 (1.03)	0.71 ¹	−0.32 (1.73)
Stations located at sea level	0.79	0.10 (1.07)	0.80	−0.16 (1.04)	0.76	−0.12 (1.16)	0.61	0.21 (1.16)
Stations above sea level	0.97	0.01 (0.80)	0.98	−0.30 (0.68)	0.98	−0.11 (0.70)	0.96	0.68 (0.71)
[surface–12 km] partial column								
All latitudes	0.63	1.44 (5.57)	0.80	1.76 (4.52)	0.81	2.09 (4.10)	0.68	2.34 (4.45)
High latitudes	0.14 ¹	−3.04 (9.95)	0.09 ¹	0.69 (6.82)	0.75 ¹	4.46 (3.66)	0.31 ¹	1.96 (4.41)
Mid-latitudes	0.75	2.52 (4.30)	0.79	2.43 (3.95)	0.79	2.51 (3.82)	0.75	3.29 (3.89)
Tropics	0.79 ¹	−2.75 (3.81)	0.73	0.21 (3.98)	0.66	−1.22 (3.60)	−0.24 ¹	−1.48 (4.95)
Stations located at sea level	0.70	1.84 (4.98)	0.82	2.22 (4.05)	0.82	2.01 (4.18)	0.60	1.36 (4.87)
Stations above sea level	0.42	0.89 (6.34)	0.74	1.17 (5.03)	0.77	2.16 (4.05)	0.88	3.86 (3.23)

¹ Number of coincidences less than 20.

4 Summary and conclusions

In this work, retrievals of total and tropospheric ozone columns from radiances measured by the IASI instrument have been performed.

Global scale distributions of total ozone columns retrieved from the IASI spectra have been obtained for more than a year of measurements. Comparisons of these global distributions with GOME-2 and ground-based measurements from the Dobson and Brewer network have been performed for 2008 and showed an excellent agreement, with a correlation coefficient better than 0.9 and 0.85, respectively. On average, a positive bias of about 9 DU (~3.3%) has been found. In Massart et al. (2009), it was also shown that on average, IASI NN tends to overestimate the total ozone

columns compared to columns obtained from the joined MLS and SCIAMACHY analysis.

The retrieval of ozone vertical profiles from a set of IASI spectra collocated with 490 ozonesonde measurements between June 2007 and August 2008 has also been performed. Tropospheric partial columns have been derived from ozone profiles and were compared to ozonesonde measurements. The comparisons showed that tropospheric ozone is also well measured, with a correlation of 0.95 for the [surface–6 km] partial column and a correlation of 0.77 for the [surface–12 km] partial column. IASI retrievals overestimate the tropospheric ozone columns with respect to the sondes. We have found positive average biases of 0.15 DU (1.2%) and of 3 DU (11%) for the [surface–6 km] and [surface–12 km] partial columns, respectively.

A new optimized algorithm based on the OEM is under development to allow ozone profile retrievals in near-real time. It will be an adaptation of the Fast Operational/Optimal Retrieval on Layers for IASI (FORLI) algorithm currently used for carbon monoxide (George et al., 2009; Turquety et al., 2009).

On the theoretical side, evidence that improvements in measuring tropospheric ozone could be gained by combining information from complementary observations in the UV-vis and the TIR has been obtained (Landgraf and Hasekamp, 2007; Worden et al., 2007), though this has yet to be tested. We plan to perform further validation, in particular by exploiting the possibilities of a combined IASI and GOME-2 ozone profile retrievals and by delivering improved ozone profile products based on this combination. This will be carried out in the framework of the Satellite Application Facility on Ozone and Atmospheric Chemistry Monitoring (O3M-SAF). Work is also in progress to assimilate tropospheric ozone in a regional air quality model to assess the IASI potential of improving chemistry-transport model ozone fields and thus of improving air quality forecasts.

Acknowledgements. IASI has been developed and built under the responsibility of the Centre National des Etudes Spatiales (CNES, France). It is flown onboard the MetOp satellites as part of the Eumetsat Polar System. The IASI Level 1 data are distributed in near real time by Eumetsat through the Eumetcast dissemination system. The authors acknowledge the Ether French atmospheric database (<http://ether.ipsl.jussieu.fr>) for providing the IASI data. The GOME-2 Level 2 data were provided by the DLR through Eumetcast. The ozonesonde data used in this work were provided by the World Ozone and Ultraviolet Data Centre (WOUDC), the Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) and the Global Monitoring Division (GMD) of NOAA's Earth System Research Laboratory and is publicly available (see <http://www.woudc.org>, <http://croc.gsfc.nasa.gov/shadoz>, <http://www.esrl.noaa.gov/gmd>). All the personnel of the agencies cited above for providing the ozonesonde data are acknowledged. A. Boynard is grateful to the CNES and the "Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie" (ADEME, France) for financial support. The research in Belgium was funded by the "Actions de Recherche Concertées" (Communauté Française), the Fonds National de la Recherche Scientifique (FRS-FNRS F.4511.08), the Belgian State Federal Office for Scientific, Technical and Cultural Affairs and the European Space Agency (ESA-Prodex C90-327). The authors are grateful to INSU for publication support.

Edited by: T. Wagner



The publication of this article is financed by CNRS-INSU.

References

- Balis, D., Lambert, J.-C., Van Roozendaal, M., Loyola, D., Spurr, R., Livschitz, Y., Valks, P., Ruppert, T., Gerard, P., Granville, J., and Amiridis, V.: Reprocessing the 10-year GOME/ERS-2 total ozone record for trend analysis: the new GOME Data Processor Version 4.0, Validation, *J. Geophys. Res.*, 112, D07307, doi:10.1029/2005JD006376, 2007.
- Balis, D., Koukouli, M., Loyola, D., Valks, P., and Hao, N.: O3M SAF second validation report of GOME-2 total ozone products, REF:SAF/O3M/AUTH/GOME-2VAL/RP/02, 2008.
- Brewer, A. W.: A replacement for the Dobson spectrophotometer?, *Pure Appl. Geophys.*, 106–108, 919–927, 1973.
- Chandra, S., Ziemke, J. R., and Martin, R. V.: Tropospheric ozone at tropical and middle latitudes derived from TOMS/MLS residual: Comparison with a global model, *J. Geophys. Res.*, 108, 4291, doi:10.1029/2002JD002912, 2003.
- Clarisse, L., Coheur, P. F., Prata, A. J., Hurtmans, D., Razavi, A., Phulpin, T., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: Tracking and quantifying volcanic SO₂ with IASI, the September 2007 eruption at Jebel at Tair, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7723–7734, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/7723/2008/>.
- Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Turquety, S., George, M., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Wespes, C., Herbin, H., Blumstein, D., Tournier, B., and Phulpin, T.: The IASI/MetOp Mission: First Observations and Highlights of its Potential Contribution to GMES, *COSPAR Inf. Bul.*, 2007, 19–24, 2007.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041–6054, 2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/6041/2009/>.
- Coheur, P.-F., Barret, B., Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: Retrieval and characterization of ozone vertical profiles from a thermal infrared nadir sounder, *J. Geophys. Res.*, 110, D24303, doi:10.1029/2005JD005845, 2005.
- Deeter, M. N., Edwards, D. P., Gille, J. C., and Drummond, J. R.: Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, *J. Geophys. Res.*, 112, D24306, doi:10.1029/2007JD008929, 2007.
- Divakarla, M., Barnett, C., Goldberg, M., Maddy, E., Irion, F., Newchurch, M., Liu, X., Wolf, W., Flynn, L., Labow, G., Xiong, X., Wei, J., and Zhou, L.: Evaluation of Atmospheric Infrared Sounder ozone profiles and total ozone retrievals with matched ozonesonde measurements, ECMWF ozone data, and Ozone Monitoring Instrument retrievals, *J. Geophys. Res.*, 113, D15308, doi:10.1029/2007JD009317, 2008.
- Dobson, G. M. B.: A photo-electric spectrometer for measuring the amount of atmospheric ozone, *P. Phys. Soc.*, 324–339, 1931.
- Eremenko, M., Dufour, G., Foret, G., Keim, C., Orphal, J., Beekmann, M., Bergametti, G., and Flaud, J.-M.: Tropospheric ozone distributions over Europe during the heat wave in July 2007 observed from infrared nadir spectra recorded by IASI, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L18805, doi:10.1029/2008GL034803, 2008.
- Fishman, J. and Larsen, J. C.: Distribution of total ozone and stratospheric ozone in the tropics: Implications for the distribution of tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 92, 6627–6634, 1987.
- Fishman, J., Watson, C. E., Larsen, J. C., and Logan, J. A.: Distribution of tropospheric ozone determined from satellite data, *J.*

- Geophys. Res., 95, 3599–3617, 1990.
- George, M., Clerbaux, C., Hurtmans, D., Turquety, S., Coheur, P.-F., Pommier, M., Hadji-Lazaro, J., Edwards, D. P., Worden, H., Luo, M., Rinsland, C., and McMillan, W.: Carbon monoxide distributions from the IASI/METOP mission: evaluation with other space-borne remote sensors, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 9, 9793–9822, 2009, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/9/9793/2009/>.
- Hoogen, R., Rozanov, V. V., and Burrows, J. P.: Ozone profiles from GOME satellite data: Algorithm and first validation, *J. Geophys. Res.*, 104(D7), 8263–8280, 1999.
- Jourdain, L., Worden, H. M., Worden, J. R., Bowman, K., Li, Q., Eldering, A., Kulawik, S. S., Osterman, G., Boersma, K. F., Fisher, B., Rinsland, C. P., Beer, R., and Gunson, M.: Tropospheric vertical distribution of tropical Atlantic ozone observed by TES during the northern African biomass burning season, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L04810, doi:10.1029/2006GL028284, 2007.
- Keim, C., Eremenko, M., Orphal, J., Dufour, G., Flaud, J.-M., Höpfner, M., Boynard, A., Clerbaux, C., Payan, S., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Claude, H., Dier, H., Johnson, B., Kelder, H., Kivi, R., Koide, T., López Bartolomé, M., Lambkin, K., Moore, D., Schmidlin, F. J., and Stübi, R.: Tropospheric ozone from IASI: comparison of different inversion algorithms and validation with ozone sondes in the northern middle latitudes, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 9, 11441–11479, 2009, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/9/11441/2009/>.
- Kerr, J. B., Asbridge, I. A., and Evans, W. F. J.: Intercomparison of total ozone measured by the Brewer and Dobson spectrophotometers at Toronto, *J. Geophys. Res.*, 93, 11129–11140, 1988.
- Landgraf, J. and Hasekamp, O. P.: Retrieval of tropospheric ozone: The synergistic use of thermal infrared emission and ultraviolet reflectivity measurements from space, *J. Geophys. Res.*, 112, D08310, doi:10.1029/2006JD008097, 2007.
- Li, D. and Shine, K. P.: A 4-dimensional ozone climatology for UGAMP models, Internal Report No. 35, U.G.A.M.P., 1995.
- Liu, X., Chance, K., Sioris, C. E., Spurr, R. J. D., Kurosu, T. P., Martin, R. V., and Newchurch, M. J.: Ozone profile and tropospheric ozone retrievals from the Global Ozone Monitoring Experiment: Algorithm description and validation, *J. Geophys. Res.*, 110, D20307, doi:10.1029/2005JD006240, 2005.
- Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J.: First steps towards the assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5073–5091, 2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/5073/2009/>.
- Nassar, R., Logan, J. A., Worden, H. M., Megretskaia, I. A., Bowman, K. W., Osterman, G. B., Thompson, A. M., Tarasick, D. W., Austin, S., Claude, H., Dubey, M. K., Hocking, W. K., Johnson, B. J., Joseph, E., Merrill, J., Morris, G. A., Newchurch, M., Oltmans, S. J., Posny, F., Schmidlin, F. J., Vömel, H., Whiteman, D. N., and Witte, J. C.: Validation of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) Nadir Ozone Profiles Using Ozone Sonde Measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S17, doi:10.1029/2007JD008819, 2008.
- Osterman, G., Kulawik, S. S., Worden, H. M., Richards, N. A. D., Fisher, B. M., Eldering, A., Shephard, M. W., Froidevaux, L., Labow, G., Luo, M., Herman, R. L., Bowman, K. W., and Thompson, A. M.: Validation of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) Measurements of the Total, Stratospheric and Tropospheric Column Abundance of Ozone, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S16, doi:10.1029/2007JD008801, 2008.
- Parrington, M., Jones, D. B. A., Bowman, K. W., Horowitz, L. W., Thompson, A. M., Tarasick, D. W., and Witte, J. C.: Estimating the summertime tropospheric ozone distribution over North America through assimilation of observations from the Tropospheric Emission Spectrometer, *J. Geophys. Res.*, 113, D18307, doi:10.1029/2007JD009341, 2008.
- Rodgers, C. D.: Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation, *Rev. Geophys.*, 14, 609–624, 1976.
- Rodgers, C. D.: Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice, World Scientific, Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics, 2, Hackensack, N. J., 2000.
- Rodgers, C. D. and Connor, B.: Intercomparison of remote sounding instruments, *J. Geophys. Res.*, 108(D3), 4116, doi:10.1029/2002JD002299, 2003.
- Rothman, L. S., Jacquemart, D., Barbe, A., Chris Benner, D., Birk, M., Brown, L. R., Carleer, M. R., Chackerian Jr., C., Chance, K., Coudert, L. H., Dana, V., Devi, V. M., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Hartmann, J.-M., Jucks, K. W., Maki, A. G., Mandin, J.-Y., Massie, S. T., Orphal, J., Perrin, A., Rinsland, C. P., Smith, M. A. H., Tennyson, J., Tolchenov, R. N., Toth, R. A., Vander Auwera, J., Varanasi, P., and Wagner, G.: The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 96, 139–204, 2005.
- Schlüssel, P., Hultberg, T. H., Philipps, P. L., August, T., and Calbet, X.: The operational IASI Level 2 processor, *Adv. Space Res.*, 36, 982–988, doi:10.1016/j.asr.2005.03.008, 2005.
- Smit, H. G. J., Straeter, W., Johnson, B., Oltmans, S., Davies, J., Tarasick, D. W., Hoegger, B., Stubi, R., Schmidlin, F., Northam, T., Thompson, A., Witte, J., Boyd, I., and Posny, F.: Assessment of the performance of ECC-ozonesondes under quasi-flight conditions in the 10 environmental simulation chamber: Insights from the Juelich Ozone Sonde Intercomparison Experiment (JOSIE), *J. Geophys. Res.*, 112, D19306, doi:10.1029/2006JD007308, 2007.
- Thompson, A. M., Dodderidge, B. G., White, J. C., Hudson, R. D., Luke, W. T., Johnson, J. E., Johnson, B. J., Oltmans, S. J., and Weller, R.: Tropical tropospheric ozone (TTO) maps from Nimbus 7 and Earth Probe TOMS by the modified-residual method: Evaluation with sondes, ENSO signals, trends from Atlantic regional time series, *J. Geophys. Res.*, 104, 26961–26975, 1999.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., McPeters, R. D., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogawa, T., Johnson, B. J., Vömel, H., and Labow, G.: Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology 1, Comparison with Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) and ground-based measurements, *J. Geophys. Res.*, 108(D2), 8238, doi:10.1029/2001JD000967, 2003a.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogawa, T., Fortuin, J. P. F., and Kelder, H. M.: Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology 2, Tropospheric variability and the zonal wave-one,

- J. Geophys. Res., 108(D2), 8241, doi:10.1029/2002JD002241, 2003b.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., Oltmans, S. J., and Schmidlin, F. J.: Shadoz: A tropical ozonesonde-radiosonde network for the atmospheric community, B. Am. Meteorol. Soc., 85(10), 1549–1564, 2004.
- Thompson, A. M., Stone, J. B., Witte, J. C., Miller, S. K., Oltmans, S. J., Kucsera, T. L., Ross, K. L., Pickering, K. E., Merrill, J. T., Forbes, G., Tarasick, D. W., Joseph, E., Schmidlin, F. J., McMillan, W. W., Warner, J., Hints, E. J., and Johnson, J. E.: Intercontinental Chemical Transport Experiment Ozonesonde Network Study (IONS) 2004: 2. Tropospheric ozone budgets and variability over northeastern North America, J. Geophys. Res., 112, D12S13, doi:10.1029/2006JD007670, 2007.
- Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: First satellite ozone distributions retrieved from nadir high-resolution infrared spectra, Geophys. Res. Lett., 29, 2198, doi:10.1029/2002GL016431, 2002.
- Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., Hauglustaine, D. A., Clough, S. A., Cassé, V., Schlüssel, P., and Mégie, G.: Operational trace gas retrieval algorithm for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, J. Geophys. Res., 109, D21301, doi:10.1029/2004JD004821, 2004.
- Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Josset, D., and Tsamalis, C.: Tracking the emission and transport of pollution from wildfires using the IASI CO retrievals: analysis of the summer 2007 Greek fires, Atmos. Chem. Phys., 9, 4897–4913, 2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/4897/2009/>.
- Van Roozendaal, M., Loyola, D., Spurr, R., Balis, D., Lambert, J.-C., Livschitz, Y., Valks, P., Ruppert, T., Kenter, P., and Fayt, C.: Ten years of GOME/ERS-2 total ozone data – The new GOME data processor (GDP) version 4:1, Algorithm description, J. Geophys. Res., 111, D14311, doi:10.1029/2005JD006375, 2006.
- Weber, M., Lamsal, L. N., Coldewey-Egbers, M., Bramstedt, K., and Burrows, J. P.: Pole-to-pole validation of GOME WFDOAS total ozone with groundbased data, Atmos. Chem. Phys., 5, 1341–1355, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/1341/2005/>.
- Wespes, C., Hurtmans, D., Herbin, H., Barret, B., Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., and Coheur, P.-F.: First global distributions of nitric acid in the troposphere and the stratosphere derived from infrared satellite measurements, J. Geophys. Res., 112, D13311, doi:10.1029/2006JD008202, 2007.
- Worden, H. M., Logan, J. A., Worden, J. R., Beer, R., Bowman, K., Clough, S. A., Eldering, A., Fisher, B. M., Gunson, M. R., Herman, R. L., Kulawik, S. S., Lampel, M. C., Luo, M., Megretskaia, I. A., Osterman, G. B., and Shephard, M. W.: Comparisons of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) ozone profiles to ozonesondes: Methods and initial results, J. Geophys. Res., 112, D03309, doi:10.1029/2006JD007258, 2007.
- Zhang, L., Jacob, D. J., Bowman, K. W., Logan, J. A., Turquety, S., Hudman, R. C., Qinbin, L., Beer, R., Worden, H. M., Worden, J. R., Rinsland, C. P., Kulawik, S. S., Lampel, M. C., Shephard, M. W., Fisher, B. M., Eldering, A., and Avery, M.: Ozone-CO correlations determined by the TES satellite instrument in continental outflow regions, Geophys. Res. Lett., 33, L18804, doi:10.1029/2006GL026399, 2006.
- Ziemke, J. R., Chandra, S., and Bhartia, P. K.: Two new methods for deriving tropospheric column ozone from TOMS measurements: Assimilated UARS MLS/HALOE and convective-cloud differential techniques, J. Geophys. Res., 103, 22115–22127, 1998.

Abréviations et acronymes

AASQA	Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l’Air
ADEOS	Advanced Earth Observing Satellite
ADEME	Agence De l’Environnement et de la Maîtrise de l’Energie
AIRS	Atmospheric InfraRed Sounder
AVHRR	Advanced Vary High Resolution Radiometer
BDQA	Base de données sur la qualité de l’air
CFC	ChloroFluoroCarbures
CLA	Couche Limite Atmosphérique
CNES	Centre National d’Etudes Spatiales
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
CMDL	Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory
COV	Composés Organiques Volatils
COVNM	Composés Organiques Volatils Non Methaniques
DRIRE	Directions Régionales de l’Industrie, de la Recherche et de l’Environnement
DU	Dobson Unit (en français : unité Dobson)
ECC	Electrochemical Concentration Cell
ECMWF	European Centre for Medium range Weather Forecasts (en français : CEPMMT Centre Européen pour la Prévision Météorologique Moyen Terme)
EMEP	Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air Pollutants in Europe
EOS	Earth Observing System
EPS	EUMETSAT Polar System
ERS	European Remote Sensing
ESA	European Space Agency (en français : ASE Agence Spatiale Européenne)

EUMETSAT	EUropean organization for the exploitation of METeorological SATellites
FORLI	Fast Operational/Optimal Retrieval on Layers for IASI
FTS	Fourier Transform Spectrometer
GEISA	Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques
GEMS	Global Monitoring for Environment and Security
GLCF	Global Land Cover Facility
GMD	Global Monitoring Division
GOME	Global Ozone Monitoring Experiment
HITRAN	High-resolution TRANsmission molecular absorption database
IASI	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (en français : Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge)
IMG	Interferometric Monitor for Greenhouse gases
INERIS	Institut National de l'Environnement industriel et des RISques
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change (en français: GIEC Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat)
IPSL	Institut Pierre Simon Laplace
IR	InfraRouge
ITCZ	InterTropical Convergence Zone (en français : ZCIT Zone de Convergence InterTropicale)
JPL	Jet Propulsion Laboratory
LATMOS	Laboratoire ATmosphères, Milieux, Observations Spatiales
LAURE	Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie
LBLRTM	Line-By-Line Radiative Transfer Model
LIDAR	LIght Detection And Ranging
LISA	Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques
LMD	Laboratoire de Météorologie Dynamique
LUT	Look Up Tables
MACC	Monitoring of the Atmospheric Composition and Climate
MELCHIOR	Modèle d'Etude Lagrangienne de la CHImie de l'Ozone à l'échelle Régionale
METOP	METéorologie OPerationelle
MIMOSA	Modélisation Isentrope du transport Mésoméchelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection
MLS	Microwave Limb Sounder

MM5	Fifth-Generation NCAR / Penn State Mesoscale Model
MOZAIC	Measurements of OZone, water vapour, carbon monoxide and nitrogen oxides by AIRbus in-service airCRAFT
MOZART	Model for Ozone And Related chemical Tracers
NASA	NAtional Space Agency
NCAR	National Center for Atmospheric Research (Etats-Unis)
NDACC	Network for the Detection of Atmospheric Composition Change
NEDT	Noise Equivalent Temperature Difference
NN	Neural Network
O3MSAF	Satellite Application Facility on Ozone and Atmospheric Chemistry Monitoring
OEM	Optimal Estimation Method
OMI	Ozone Monitoring Instrument
PF	Polar Front
ppb	part per billion (en français : partie par milliard)
ppm	part per million (en français : partie par million)
ppt	part per trillion (en français : partie par billion)
POP	Polluants Organiques Persistants
PPM	Parabolic Piecewise Method
PREV'AIR	plate-forme de prévision opérationnelle de la qualité de l'air, opérée par l'INERIS (www.prevoir.org)
PV	Potential Vorticity
RADAR	RADio Detection And Ranging
RMS	Root Mean Square, erreur quadratique moyenne
SCIAMACHY	Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric ChartographY
SHADOZ	Southern Hemisphere Additional Ozonesondes
STD	Standard Deviation
sza	solar zenithal angle
TES	Tropospheric Emissions Spectrometer
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
UGAMP	UK Universities Global Atmospheric Modelling Program
ULB	Université Libre de Bruxelles
UTLS	Upper Troposphere Lower Stratosphere

UV	Ultra Violet
UV-vis	Ultra Violet-visible
vmr	volume mixing ratio
WMO	World Meteorological Organization
WOUDC	World Ozone Ultraviolet Data Center

Bibliographie

- Académie des Sciences: Ozone et propriétés oxydantes de la troposphère, édité par l'Académie des Sciences, Rapport 30, 1993.
- Aires, F., Prigent, C., Rossow, W., and Rothstein, M.: A new neural network approach including first guess for retrieval of atmospheric water vapor, cloud liquid water path, surface temperature, and emissivities over land from satellite microwave observations, *J. Geophys. Res.*, 106(D14), 14887-14907, 2001.
- Akimoto, H.: Global air quality and pollution, *Science*, 302(5651), 1609–1844, 2003.
- Amato, U., Antoniadis, A., De Feis, I., Masiello, G., Matricardi, M., and Serio, C.: Technical Note: Functional sliced inverse regression to infer temperature, water vapour and ozone from IASI data, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5321–5330, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/5321/2009/.
- Appenzeller, C. and Holton, J. R.: Tracer lamination in the stratosphere: A global climatology, *J. Geophys. Res.*, 102(D12), 13,555–13,569, 1997.
- Atkinson, R., Baulsch, D. L., Cox, R. A., Hampton, R. F., Kerr, J. A., Rossi, M. J., and Troe, J.: Evaluated kinetics, photochemical and heterogeneous data, *J. Phys. Chem., Ref. Data*, 26, 3, 521-1012, 1997.
- August, T., Schlüssel, P., Munro, R., Calbet, X., Oduleye, O., Arriaga, A., Hultberg, T., Hadji-Lazaro, J., Turquety, S., and Clerbaux, C.: ANN ozone retrieval within the operational level 2 processor, *Proceedings of the Eumetsat Conference*, Darmstadt, 2009.
- Backus, G. E., and Gilbert, J. F.: Uniqueness in the inversion of inaccurate gross Earth data, *Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A*, 266, 123-192, 1970.
- Balis, D., Lambert, J.-C., Van Roozendael, M., Loyola, D., Spurr, R., Livschitz, Y., Valks, P., Ruppert, T., Gerard, P., Granville, J., and Amiridis, V.: Reprocessing the 10-year GOME/ERS-2 total ozone record for trend analysis: the new GOME Data Processor Version 4.0, Validation, *J. Geophys. Res.*, 112, D07307, doi:10.1029/2005JD006376, 2007.
- Balis, D., Koukouli, M., Loyola, D., Valks, P., and Hao, N.: O3M SAF second validation report of GOME-2 total ozone products, REF:SAF/O3M/AUTH/GOME-2VAL/RP/02, 2008.

- Barret, B., Turquety, S., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Bey, I., Auvray, M., and Coheur, P.-F.: Global carbon monoxide vertical distributions from spaceborne high-resolution FTIR nadir measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2901–2914, 2005.
- Beer, R.: TES on the Aura mission: Scientific objectives, measurements and analysis overview, *IEEE Trans. Geosci. Rem. Sens.*, 44(5), 1102, doi:10.1109/TGRS.2005.863716, 2006.
- Beekmann, M. and Derognat, C.: Monte Carlo uncertainty analysis of a regional-scale transport chemistry model constrained by measurements from the atmospheric pollution over the Paris area (ESQUIF) campaign. *J. Geophys. Res.*, 108(D17), 8559, doi:10.1029/2003JD003391, 2003.
- Beekmann, M. and Vautard, R.: A modelling study of photochemical regimes over Europe: robustness and variability, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 9, 1521–1560, 2009, www.atmos-chem-phys-discuss.net/9/1521/2009/.
- Beer, R., Glavich, T. A., and Rider, D. M.: Tropospheric emission spectrometer for the Earth Observing System's Aura satellite, *Appl. Opt.*, 40, 2356–2367, doi:10.1364/AO.40.002356, 2001.
- Blond, N.: Assimilation de données photochimiques et prévisions de l'ozone troposphérique, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, 2002.
- Blond, N., and Vautard, R.: Three-dimensional ozone analyses and their use for short-term ozone forecasts, *J. Geophys. Res.*, 109, D17303, doi:10.1029/2004JD4515, 2004.
- Blond, N., Boersma, K. F., Eskes, H. J., van der A, R. J., Van Roozendael, M., De Smedt, I., Bergametti, G., and Vautard, R.: Intercomparison of SCIAMACHY nitrogen dioxide observations, in situ measurements and air quality modeling results over Western Europe, *J. Geophys. Res.*, 112, D10311, doi:10.1029/2006JD007277, 2007.
- Blumstein, D., Chalon, G., Carlier, T., Bull, C., Hébert, P., Maciaszek, T., Ponce, G., Phulpin, T., Tournier, B., and Siméoni, D.: IASI instrument: Technical Overview and measured performances, SPIE, Denver, pp. 5522–5543, 2004.
- Bouttier, F. and Courtier, P.: Data Assimilation concepts and methods, Meteorological Training Course Lecture Series, ECMWF, Reading, UK, 53, 1999.
- Bowman, K. W., Worden, J., Steck, T., Worden, H. M., Clough, S., and Rodgers, C.: Capturing time and vertical variability of tropospheric ozone: A study using TES nadir retrievals, *J. Geophys. Res.*, 107(D23), 4723, doi:10.1029/2002JD002150, 2002.
- Bowman, K. W., Rodgers, C. D., Kulawik, S. S., Worden, J., Sarkissian, E., Osterman, G., Steck, T., Ming, L., Eldering, A., Shephard, M., Worden, H., Lampel, M., Clough, S., Brown, P., Rinsland, C., Gunson, M., and Beer, R.: Tropospheric emission spectrometer: Retrieval method and error analysis, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 44, 1297–1307, 2006.
- Boynard, A., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Turquety, S., George, M., Hadji-Lazaro, J., Keim, C., and Meyer-Arnek, J.: Measurements of total and tropospheric ozone from IASI: comparison with correlative satellite and ozonesonde observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6255–6271, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/6255/2009/.

- Brasseur, G. P., Hauglustaine, D. A., Walters, S., Rasch, R. J., Müller, J.-F., Granier, C., and Tie, X. X.: MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, 103(D21), 28265–28289, 1998.
- Brasseur, G., Orlando, J. J., and Tyndall, G. S.: *Atmospheric Chemistry and Global Change*, Oxford University Press, New York, 1999.
- Brewer, A. W.: A replacement for the Dobson spectrophotometer?, *Pure App. Geophys.*, v.106-108, 919-927, 1973.
- Brimblecombe, P., *The Big Smoke*, Methuen, 1987.
- Burger, G., van Loon, P. J., Evensen, G.: On the analysis scheme in the ensemble kalman filter, *Mon. Weather Rev.*, 126, 1719-1724, 1998.
- Carter, W. P. L.: A detail mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds, *Atmos. Environ.*, 24A, 481-518, 1990.
- Carvalho, A. C., Menut, L., Vautard, R. et Nicolau, J.: Rapport final d'étude: Evaluation de l'incertitude de la prévision de la qualité de l'air par méthodes d'ensembles utilisant les modèles ARPEGE et CHIMERE, Contract 05 62 c 0094 ADEME, 2007.
- Cayla, F. R: IASI infrared interferometer for operations and research, in: *High Spectral Resolution Infrared Remote Sensing for Earth's Weather and Climate Studies*, edited by: Chedin, A., Chahine, M. T., and Scott, N. A., NATO ASI Series, vol. I 9, Springer Verlag, Berlin, 1993.
- Chameides, W. L. and Walker, J. C. G.: A photochemical theory for tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 78, 8751-9760, 1973.
- Chandra, S., Ziemke, J. R., and Martin, R. V.: Tropospheric ozone at tropical and middle latitudes derived from TOMS/MLS residual: Comparison with a global model, *J. Geophys. Res.*, 108, 4291, doi:10.1029/2002JD002912, 2003.
- Chang, J., Brose, R., Isaken, I., Madronich, S., Middleton, P., Stockwell, W., Walcek, C.: A Three-Dimensional Eulerian Acid Deposition Model: Physical Concepts and Formulation, *J. Geophys. Res.* 92, 14681-14700, 1987.
- Clarisse, L., Coheur, P.-F., Prata, A. J., Hurtmans, D., Razavi, A., Phulpin, T., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: Tracking and quantifying volcanic SO₂ with IASI, the September 2007 eruption at Jebel at Tair, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7723-7734, 2008.
- Clarisse, L., Clerbaux, C., Dentener, F., Hurtmans, D., and Coheur, P. F.: Infrared space observations unveil first global distributions of ammonia, *Nature Geoscience*, doi:10.1038/ngeo551, 2009.
- Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Turquety, S., George, M., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Wespes, C., Herbin, H., Blumstein, D., Tournier, B., and Phulpin, T.: The IASI/MetOp Mission: First Observations and Highlights of its Potential Contribution to GMES, *COSPAR Inf. Bul.*, Vol 2007, 19-24, 2007.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/METOP

- sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041–6054, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/6041/2009/.
- Clough, S. A., Iacono, M. J., and Moncet, J.-L.: Line-by-line calculation of atmospheric fluxes and cooling rates: 2. Application to carbon dioxide, ozone, methane, nitrous oxide and halocarbons, *J. Geophys. Res.*, 100, 16519–16535, 1995.
- Coheur, P.-F., Barret, B., Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: Retrieval and characterization of ozone vertical profiles from a thermal infrared nadir sounder, *J. Geophys. Res.*, 110, D24303, doi:10.1029/2005JD005845, 2005.
- Coheur, P.-F., Clarisse, L., Turquety, S., Hurtmans, D., and Clerbaux, C.: IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5655–5667, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/5655/2009/.
- Coletta, P. and Woodward, P. R.: The piecewise parabolic method (PPM) for gas dynamical simulations, *Journal of Computational Physics*, 11, 38–39, 1984.
- Coll, I., Lasry, F., Fayet, S., Armengaud, A., Vautard, R.: Simulation and evaluation of 2010 emission control scenarios in a Mediterranean area, *Atmos Environ.*, 43(27), 4194–4204, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.05.034, 2009.
- Colville, R. N., Hutchinson, E. J., Mindell, J. S., and Warren, R. F.: The transport sector as a source of air pollution, *Atmos. Environ.*, 35(9), 1537–1565, 2001.
- Coman, A.: Modélisation spatio-temporelle de la pollution atmosphérique urbaine à partir des mesures d'un réseau de surveillance de la qualité de l'air, Thèse de doctorat, Université Paris Est, Paris 12, 2008.
- Comer, M. M.: Retrieving Carbon Monoxide Abundances from the Atmospheric Infrared Sounder (AIRS), Ph.D. Dissertation, University of Maryland Baltimore County, USA, 2006.
- Crevoisier, C., Chédin, A., Matsueda, T., Armante, R., and Scott, N. A.: First year of upper tropospheric integrated content of CO₂ from IASI hyperspectral infrared observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 4797–4810, 2009a, www.atmos-chem-phys.net/9/4797/2009/.
- Crevoisier, C., Nobileau, D., Fiore, A. M., Armante, R., Chédin, A., and Scott, N. A.: A new insight on tropospheric methane in the Tropics – first year from IASI hyperspectral infrared observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6337–6350, 2009b, www.atmos-chem-phys.net/9/6337/2009/.
- Crutzen, P. J.: A discussion of the chemistry of some minor constituents in the stratosphere and troposphere, *Pure Appl. Geophys.*, 106–108, 1385–1366, 1973.
- Daley, R.: *Atmospheric Data Analysis*, Cambridge Atmospheric and Space Science Series, Cambridge University Press. ISBN 0-521-38215-7, 1991.
- Danielsen, E. F.: Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity, *J. Atmos. Sci.*, 25, 502–518, 1968.
- Deeter, M. N., Edwards, D. P., Gille, J. C., and Drummond, J. R.: Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, *J. Geophys. Res.*, 112, D24306, doi:10.1029/2007JD008929, 2007.

- Deguillaume, L., Beekmann, M., Menut, L.: Bayesian Monte Carlo analysis applied to regional scale inverse emission modelling for reactive trace gases, *J. Geophys. Res.*, 112, D02307, doi:10.1029/2006JD007518, 2007.
- Delle Monache, L., and Stull, R. B.: An ensemble air-quality forecast over western Europe during an ozone episode, *Atmos. Environ.*, 37, 3469–3474, 2003.
- Delmas, R., Mégie, G., et Peuch, V.-H. : *Physique et chimie de l’atmosphère*, Editions Belin, collection Echelles, 2005.
- De Moore, W. B., Sandeur, S. P., Golden, D. M., Hampton, R. F., Kurylo, M. J., Howard, C. J., Ravishankare, A. R., Kolb, C. E., and Molina, M. J.: Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modelling evaluation, 11, JPL publication 94, 26, JPL, Pasadena, US, 1994.
- Derognat, C., Beekmann, M., Baeumle, M., Martin, D., and Schmidt, H.: Effect of biogenic volatile organic compound emissions on tropospheric chemistry during the Atmospheric Pollution Over the Paris Area (ESQUIF) campaign in the Ile-de-France region, *J. Geophys. Res.*, 108(D17), 8560, doi:10.1029/2001JD001421, 2003.
- Divakarla, M., Barnet, C., Goldberg, M., Maddy, E., Irion, F., Newchurch, M., Liu, X., Wolf, W., Flynn, L., Labow, G., Xiong, X., Wei, J., and Zhou, L.: Evaluation of Atmospheric Infrared Sounder ozone profiles and total ozone retrievals with matched ozonesonde measurements, ECMWF ozone data, and Ozone Monitoring Instrument retrievals, *J. Geophys. Res.*, 113, D15308, doi:10.1029/2007JD009317, 2008.
- Dobson, G. M. B.: A photo-electric spectrometer for measuring the amount of atmospheric ozone, *Proc. Phys. Soc.*, 324–339, 1931.
- Duda, D. P., and Minnis, P.: A study of skin temperature/cloud shadowing relationships at the ARM SGP site, *Proc. 10th ARM Science Team Meeting*, San Antonio, 418 TX, March 13-17, 2000.
- EEA, Air pollution in Europe 1990–2004, European Environment Agency, Report No 2/2007 (http://www.eea.europa.eu/publications/eea_report_2007_2), 2007.
- El Amraoui, L., Peuch, V.-H., Ricaud, P., Massart, S., Urban, J., Semane, N., Teyssedre, H., Cariolle, D., and Karcher, F.: Ozone loss in the 2002/03 Arctic vortex deduced from the assimilation of O₃ and N₂O measurements: N₂O as a dynamical tracer, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 134, 217-228, 2008.
- Eremenko, M., Dufour, G., Foret, G., Keim, C., Orphal, J., Beekmann, M., Bergametti, G., and Flaud, J.-M.: Tropospheric ozone distributions over Europe during the heat wave in July 2007 observed from infrared nadir spectra recorded by IASI, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L18805, doi:10.1029/10.1029/2008GL034803, 2008.
- ESQUIF, Etude et Simulation de la Qualité de l’air en Ile de France, Institut Pierre et Simon Laplace, Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques, Météo-France, Laboratoire d’Aérodologie, Forschungszentrum, Jülich, AIRPARIF, 2001.
- Evensen, G.: Using the extended Kalman filter with a multilayer quasigeostrophic ocean model, *J. Geophys. Res.*, 97, 905-17, 924, 1992.

- Evensen, G.: Sequential data assimilation with a nonlinear quasi-geostrophic model using monte carlo methods to forecast error statistics, *J. Geophys. Res.*, 99, 143-162, 1994.
- Evensen, G.: The Ensemble Kalman Filter: Theoretical Formulation and Practical Implementation, *Ocean Dynamics*, 53, 343-367, 2003.
- Fahey, D. W.: Twenty Questions and Answers About the Ozone Layer: Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2002, 42 pp., World Meteorological Organization, Geneva, 2003.
- Farman, J. C., Gardiner, B. G. and Shanklin, J. D: Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal chlorine oxide-nitrogen oxide interaction, *Nature* 315, 207-210, 1985.
- Fishman, J. and Larsen, J. C.: Distribution of total ozone and stratospheric ozone in the tropics: Implications for the distribution of tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 92, 6627-6634, 1987.
- Fishman, J., Watson, C. E., Larsen, J. C., and Logan, J. A.: Distribution of tropospheric ozone determined from satellite data, *J. Geophys. Res.*, 95, 3599-3617, 1990.
- Folberth, G., Hauglustaine, D. A., Lathière, J., and Brocheton, F.: Impact of biogenic hydrocarbons on tropospheric chemistry: Results from a global chemistry-climate model, *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 5, 1680–7375, 2005.
- Foret, G., Beekmann, M., Eremenko, M., Hamaoui, L., Schmechtig, C., Dufour, G., Boynard, A., and Ung, A.: Evaluating the potential of IASI ozone observations to constrain simulated surface ozone concentrations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8479–8491, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/8479/2009/.
- Fortems-Cheiney, A., Chevallier, F., Pison, I., Bousquet, P., Carouge, C., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., George, M., Hurtmans, D., and Szopa, S.: On the capability of IASI measurements to inform about CO surface emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8735–8743, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/8735/2009/.
- Galbally, I. E., Roy, C. R.: Destruction of ozone at the earth's surface. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 106, 599–620, 1980.
- Galmarini, S., Bianconi, R., Klug, W., Mikkelsen, T., Addis, R., Andronopoulos, S., Astrup, P., Baklanov, A., Bartniki, J., Bartzis, J. C., Bellasio, R., Bompay, F., Buckley, R., Bouzom, M., Champion, H., D'Amours, R., Davakis, E., Eleveld, H., Geertsema, G. T., Glaab, H., Kollax, M., Ilvonen, M., Manning, A., Pechinger, U., Persson, C., Polreich, E., Potemski, S., Prodanova, M., Saltbones, J., Slaper, H., Sofiev, M. A., Syrakov, D., Sørensen, J. H., Van der Auwera, L., Valkama, I., and Zelazny, R.: Ensemble dispersion forecasting – part I: Concept, approach and indicators, *Atmos. Environ.*, 38, 4607– 4617, 2004.
- Gauss, M., Myhre, G., Pitari, G., Prather, M. J., Isaksen, I. S. A., Bernsten, T. K., Brasseur, G. P., Dentener, F. J., Derwent, R. G., Hauglustaine, D. A., Horowitz, L. W., Jacob, D. J., Johnson, M., Law, K. S., Mickley, L. J., Müller, J.-F., Plantévin, P.-H., Pyle, J. A., Rogers, H. L., Stevenson, D. S., Sundet, J. K., van Weele, M., and Wild, O.: Radiative forcing in the 21st century due to ozone changes in the troposphere and the lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 108(D9), 4292, doi:10.1029/2002JD002624, 2003.

- Gauss, M., Myhre, G., Isaksen, I. S. A., Grewe, V., Pitari, G., Wild, O., Collins, W. J., Dentener, F. J., Ellingsen, K., Gohar, L. K., Hauglustaine, D. A., Iachetti, D., Lamarque, F., Mancini, E., Mickley, L. J., Prather, M. J., Pyle, J. A., Sanderson, M. G., Shine, K. P., Stevenson, D. S., Sudo, K., Szopa, S., and Zeng, G.: Radiative forcing since preindustrial times due to ozone change in the troposphere and the lower stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 575-599, 2006.
- GENEMIS (Generation of European Emission Data for Episodes) project, EUROTRAC annual report 1993, part 5 EUROTRAC international scientific secretariat, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 1994.
- George, M., Clerbaux, C., Hurtmans, D., Turquety, S., Coheur, P.-F., Pommier, M., Hadji-Lazaro, J., Edwards, D., Worden, H., Luo, M., Rinsland, C. P., and McMillan, W.: Carbon monoxide distributions from the IASI/METOP mission: evaluation with other spaceborne remote sensors, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8317-8330, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/8317/2009/.
- Gratien, A.: Spectroscopie ultraviolet-visible et infrarouge de molécules clés atmosphériques, Thèse de doctorat, Université Paris 12 et 7, 2008.
- Grontoft, T., Henriksena, J. F., Seipb, H. M.: The humidity dependence of ozone deposition onto a variety of building surfaces, *Atmos. Environ.*, 38, 59-68, doi:10.1016/j.atmosenv.2003.09.043, 2004.
- Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., and Thiria, S.: An inversion algorithm using neural networks to retrieve atmospheric CO total columns from high-resolution nadir radiances, *J. Geophys. Res.* 104, 23841-23854, 1999.
- Hadji-Lazaro, J.: Utilisation de réseaux de neurones pour l'inversion d'observations spatiales et la détermination des concentrations de constituants minoritaires dans la troposphère, Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 1999.
- Hamill, T. M., Mullen, S. L., Snyder, C., Toth, Z., and Baumhefner, D. P.: Ensemble Forecasting in the Short to Medium Range: Report from a Workshop, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 81, 2653-2664, 2000.
- Hanea, G. R., Velders, G. J. M., and Heemink, A.: Data assimilation of ground-level ozone in Europe with a Kalman filter and chemistry transport model, *J. Geophys. Res.*, 109, D10302, doi:10.1029/2003JD004283, 2004.
- Hanna, S. R., Lu, Z., Frey, H. C., Wheeler, N., Vukovich, J., Arunachalam, S., Fernau, S., and Hansen, D. A.: Uncertainties in predicted ozone concentrations due to input uncertainties for the UAM-V photochemical grid model applied to the July 1995 OTAG domain. *Atmos. Environ.*, 35, 891-903, 2001.
- Hauglustaine, D. A., Brasseur, G. P., Walters, S., Rash, P. J., Müller, J.-F., Emmons, L. K., and Carroll, M. A.: MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, 2, Model results and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 103, 28291-28335, 1998.
- Hauglustaine, D. A., Hourdin, F., Jourdain, L., Filiberti, M. A., Walters, S., Lamarque, J. F., and Holland, E. A.: Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model: Description and background tropospheric

- chemistry evaluation, *J. Geophys. Res.*, 109, D04314, doi:10.1029/2003JD003957, 2004.
- Herbin, H., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Clarisse, L., and Coheur, P.-F.: H_2^{16}O and HDO measurements with IASI/MetOp, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9433–9447, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/9433/2009/.
- Hicks, B. B., Baldocchi, D. D., Myers, T. P., Hosker, R. P., and Matt, D. R.: A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition from measured quantities, *Water, air and soil pollution*, 36, 311–330, 1987.
- Holton, J. R., Haynes, F. H., McIntyre, M. E., Douglass, A. R., Rood, R. B. and Pfister, L.: Stratosphere-troposphere exchange, *Rev. Geophys.*, 33, 403, 1995.
- Honoré, C., Rouil, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J.-M., Malherbe, L., Meleux, F., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.-H., and Poisson, N.: Predictability of European air quality: Assessment of 3 years of operational forecasts and analyses by the PREV’AIR system, *J. Geophys. Res.*, 113, D04301, doi:10.1029/2007JD008761, 2008.
- Hoogen, R., Rozanov, V. V., and Burrows, J. P.: Ozone profiles from GOME satellite data: Algorithm and first validation, *J. Geophys. Res.*, 104(D7), 8263–8280, 1999.
- Horowitz, L. W., Walters, S., Mauzerall, D. L., Emmons, L. K., Rasch, P. J., Granier, C., Tie, X., Lamarque, J.-F., Schultz, M. G., Tyndall, G. S., Orlando, J. J., Brasseur, G. P.: A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2, *J. Geophys. Res.*, 108(D24), 4784, doi:10.1029/2002JD002853, 2003.
- IPCC: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, [Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K. B., Tignor, M., and Miller, H. L. (eds.)], Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 996 pp., 2007.
- Jacquinet-Husson N., Scott N. A., Chédin A., and Chursin A. A.: The GEISA spectroscopic database system revisited for IASI direct radiative transfer modelling. *Atmospheric and Oceanic Optics*. 16, No.3, 256–82, 2003.
- Jaswinski, A.: Stochastic Process and Filtering Theory, Mathematics in Science and Engineering, vol. 64, Academic Press, New York, 1970.
- Jourdain, L., Worden, H. M., Worden, J. R., Bowman, K., Li, Q., Eldering, A., Kulawik, S. S., Osterman, G., Boersma, K. F., Fisher, B., Rinsland, C. P., Beer, R., and Gunson, M.: Tropospheric vertical distribution of tropical Atlantic ozone observed by TES during the northern African biomass burning season, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L04810, doi:10.1029/2006GL028284, 2007.
- Junge, C. E.: Global ozone budget and exchange between stratosphere troposphere, *Tellus*, 14, 363– 377, 1962.
- Kalman, R. E.: A New Approach to Linear Filtering and Prediction Problems, *Transactions of the ASME-Journal of Basic Engineering*, 82 (Series D), 35–45, 1960.

- Keim, C., Eremenko, M., Orphal, J., Dufour, G., Flaud, J.-M., Höpfner, M., Grabowski, U., Boynard, A., Clerbaux, C., et al.: Inter comparison of IASI ozone profiles from different retrieval approaches, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9329–9347, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/9329/2009/.
- Kerr, J. B., Asbridge, I. A., and Evans, W. F. J.: Intercomparison of total ozone measured by the Brewer and Dobson spectrophotometers at Toronto, *J. Geophys. Res.*, 93, 11129–11140, 1988.
- Landgraf, J. and Hasekamp, O. P.: Retrieval of tropospheric ozone: The synergistic use of thermal infrared emission and ultraviolet reflectivity measurements from space, *J. Geophys. Res.*, 112, D08310, doi:10.1029/2006JD008097, 2007.
- Lattuati, M.: Contribution à l'étude du bilan de l'ozone troposphérique à l'interface de l'Europe et de l'Atlantique Nord : Modélisation lagrangienne et mesures en altitude, Mémoire de thèse, Université Paris 6, 1997.
- Le Dimet, F. X. and Talagrand, O.: Variational algorithms for analysis and assimilation of meteorological observations : theoretical aspects, *Tellus* (38A), 97-100, 1986.
- Li, D. and Shine, K. P.: A 4-dimensional ozone climatology for UGAMP models, Internal Report No. 35, U.G.A.M.P., 1995.
- Li, Q., Jacob, D. J., Bey, I., Palmer, P. I., Duncan, B. N., Field B. D., Martin, R. V., Fiore, A. M., Yantosca, R. M., Parrish, D. P., Simmonds, P. G., and Oltmans, S. J.: Transatlantic transport of pollution and its effects on surface ozone in Europe and North America, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD001422, 2002.
- Lippmann, R. P.: An introduction to computing with neural nets, *IEEE Acoust. Speech Signal Process. Mag.*, 4-21, 1987.
- Liu, X., Chance, K., Sioris, C. E., Spurr, R. J. D., Kurosu, T. P., Martin, R. V., and Newchurch, M. J.: Ozone profile and tropospheric ozone retrievals from the Global Ozone Monitoring Experiment: Algorithm description and validation, *J. Geophys. Res.*, 110, D20307, doi:10.1029/2005JD006240, 2005.
- Madronich, S. and Flocke, S.: The role of solar radiation in atmospheric chemistry, in *Handbook of Environmental Chemistry*, edited by P. Boule, pp. 1–26, Springer, New York, 1998.
- Mallet, V., and Sportisse, B.: Uncertainty in a chemistry-transport model due to physical parameterizations and numerical approximations: An ensemble approach applied to ozone modeling, *J. Geophys. Res.*, 111, D01302, doi:10.1029/2005JD006149, 2006a.
- Mallet, V., and Sportisse, B.: Ensemble-based air quality forecasts: A multimodel approach applied to ozone, *J. Geophys. Res.*, 111, D18302, doi: 10.1029/2005JD006149, 2006b.
- Mari, C., Jacob, D. J., and Bechtold, P.: Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *J. Geophys. Res.*, 105(D17), 22,255–22,267, 2000.
- Massart, S., Clerbaux, C., Piacentini, A., Cariolle, D., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J.: First steps towards the operational assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5073-5091, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/5073/2009/.

- McClatchey, R. A., Benedict, W. S., Clough, S. A., Burch, D. E., Calfee, R. F., Fox, K., Rothman, L. S., and Garing, J. S.: AFCRL atmospheric absorption line parameters compilation, in Environ. Res. Paper 434, Rep. AFCRL-TR-73-0096, 145 pp., Air Force Cambridge Research Laboratories, Bedford, Mass., 1973.
- McMillan, W. W., Barnett, C., Strow, L., Chahine, M. T., McCourt, M. L., Warner, J. X., Novelli, P. C., Korontzi, S., Maddy, E. S., and Datta, S.: Daily global maps of carbon monoxide from NASA's Atmospheric Infrared Sounder, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L11801, doi:10.1029/2004GL021821, 2005.
- McMillan, W. W., Warner, J. X., Comer, M. M., Maddy, E., Chu, A., Sparling, L., Eloranta, E. W., Hoff, R. M., Sachse, G., Barnett, C., Razenkov, I. A., and Wolf, W.: AIRS views of transport from 12–22 July 2004 Alaskan/Canadian fires: Correlation of AIRS CO and MODIS AOD with forward trajectories and comparison of AIRS CO retrievals with DC-8 in situ measurements during INTEx-A/ICARTT, *J. Geophys. Res.*, 113, D20301, doi:10.1029/2007JD009711, 2008.
- Menut, L.: Adjoint modeling for atmospheric pollution process sensitivity at regional scale, *J. Geophys. Res.*, 108(D17), 8562, doi:10.1029/2002JD002549, 2003.
- Menut, L., Vautard, R., Beekmann, M., Honoré, C.: Sensitivity of photochemical pollution using the adjoint of a simplified chemistry-transport model, *J. Geophys. Res.*, 105(D12), 15379–15402, doi:10.1029/1999JD900953, 2000.
- Minsky, M., and Papert, S.: *Perceptrons*, MIT Press, Cambridge, MA., 1969
- Molina, M. J. and Rowland, F. S.: Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: Chlorine atom-catalysed destruction of ozone, *Nature*, 249, 810–812, 1974.
- Müller, C. : Calculs du profil de Voigt appliqués aux raies infrarouges de la stratosphère et de la mésosphère, Académie royale de Belgique, Bulletin de la classe des sciences, 5^e, série (LXX), 1984.
- Müller, M., Kaifel, A., Weber, M., Tellmann, S., Burrows, J., and Loyola, D.: Ozone profile retrieval from Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) data using a neural network approach (Neural Network Ozone Retrieval System (NNORSY)), *J. Geophys. Res.*, 108 (D16), 4497, doi :10.1029/2002JD002784, 2003.
- Nassar, R., Logan, J. A., Worden, H. M., Megretskaia, I. A., Bowman, K. W., Osterman, G. B., Thompson, A. M., Tarasick, D. W., Austin, S., Claude, H., Dubey, M. K., Hocking, W. K., Johnson, B. J., Joseph, E., Merrill, J., Morris, G. A., Newchurch, M., Oltmans, S. J., Posny, F., Schmidlin, F. J., Vömel, H., Whiteman, D. N., and Witte, J. C.: Validation of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) Nadir Ozone Profiles Using OzoneSonde Measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S17, doi:10.1029/2007JD008819, 2008.
- Olivié, D. J. L., van Velthoven, P. F. J., Beljaars, A. C. M., Kelder, H. M.: Comparison between archived and off-line diagnosed convective mass fluxes in the chemistry transport model TM3, *J. Geophys. Res.*, 109, D11303, doi:10.1029/2003JD004036, 2004.
- Oltmans, S. J., Lefohn, A. S., Harris, J. M., Galbally, I., Scheel, H. E., Bodeker, G., Brunke, E., Claude, H., Tarasick, D., Johnson, B. J., Simmonds, P., Shadwick, D.,

- Anlauf, K., Hayden, K., Schmidlin, F., Fujimoto, T., Akagi, K., Meyer, C., Nichol, S., Davies, J., et al.: Long-term changes in tropospheric ozone, *Atmos. Environ.*, 40, 3156-3173, 2006.
- Osterman, G., Kulawik, S. S., Worden, H. M., Richards, N. A. D., Fisher, B. M., Eldering, A., Shephard, M. W., Froidevaux, L., Labow, G., Luo, M., Herman, R. L., Bowman, K. W., and Thompson, A. M.: Validation of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) Measurements of the Total, Stratospheric and Tropospheric Column Abundance of Ozone, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S16, doi:10.1029/2007JD008801, 2008.
- Osterman, G.: Tropospheric Emission Spectrometer TES L2 Data User's Guide, Tech. Rep. V4.00, Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, CA, 2009.
- Parrington, M., Jones, D. B. A., Bowman, K. W., Horowitz, L. W., Thompson, A. M., Tarasick, D. W., and Witte, J. C.: Estimating the summertime tropospheric ozone distribution over North America through assimilation of observations from the Tropospheric Emission Spectrometer, *J. Geophys. Res.*, 113, D18307, doi:10.1029/2007JD009341, 2008.
- Parrington M., Jones, D. B. A., Bowman, K. W., Thompson, A. M., Tarasick, D. W., Merrill, J., Oltmans, S. J., Leblanc, T., Witte, J. C., Millet, D. B.: Impact of the assimilation of ozone from the Tropospheric Emission Spectrometer on surface ozone across North America, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L04802, doi:10.1029/2008GL036935, 2009.
- Park, M., Randel, W. J., Kinnison, D. E., Garcia, R. R., and Choi, W.: Seasonal variation of methane, water vapor, and nitrogen oxides near the tropopause: Satellite observations and model simulations, *J. Geophys. Res.*, 109, D03302, doi:10.1029/2003JD003706, 2004.
- Phulpin, T., Cayla, F., Chalon, G., Diebal, D., and Schlüssel, D.: IASI onboard Metop : Project status and scientific preparation, *Proc. of the 12th International TOVS Study Conference*, 26/02 to 4/03/2002, Lrone Vic, Australia, 2002.
- Phulpin, T., Blumstein, D., Prel, F., Tournier, B., Prunet, P., and Schlüssel, P.: Applications of IASI on MetOp-A: first results and illustration of potential use for meteorology, climate monitoring and atmospheric chemistry, *Proc. SPIE*, p. 6684, 2007.
- Picquet-Varrault, B., Orphal, J., Doussin, J.-F., Carlier, P., and Flaud, J.-M.: Laboratory intercomparison of the ozone absorption coefficients in the mid-infrared (10 mm) and ultraviolet (300 – 350 nm) spectral regions, *J. Atmos. Chem. A*, 109, 1008– 1014, 2005.
- Prigent, Aires C. F., and Rossow, W. B.: Land surface skin temperatures from a combined analysis of microwave and infrared satellite observations for an all-weather evaluation of the differences between air and skin temperatures, *J. Geophys. Res.*, 108(D10), 4310, doi:10.1029/2002JD002301, 2003.
- Razavi, A., Clerbaux, C., Wespes, C., Clarisse, L., Hurtmans, D., Payan, S., Camy-Peyret, C., and Coheur, P.-F.: Characterization of methane retrievals from the IASI space-

- borne sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7889–7899, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/7889/2009/.
- Reed, R. J.: The role of vertical motions in ozone-weather relationships, *J. Meteorol.*, 7, 263–267, 1950.
- Reynolds, S. D., Roth, P. M., and Seinfeld, J. H.: Modeling of photochemical air pollution - I. Formulation of the model, *Atmos. Environ.*, 1033–1061, 1973.
- Ricaud, P., Attié, J.-L., Teyssède, H., El Amraoui, E., Peuch, V.-H., Matricardi, M., and Schlüssel, P.: Equatorial total column of nitrous oxide as measured by IASI on MetOp-A: implications for transport processes, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 3947–3956, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/3947/2009/.
- Rodgers, C. D.: Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation, *Rev. Geophys.*, 14, 609–624, 1976.
- Rodgers, C. D.: Characterization and Error Analysis of Profiles Retrieved From Remote Sounding Measurements, *J. Geophys. Res.*, 95(D5), 5587–5595, 1990.
- Rodgers, C. D.: Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice, World Scientific, Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics, 2, Hackensack, N. J., 2000.
- Rodgers, C. D. and Connor, B.: Intercomparison of remote sounding instruments, *J. Geophys. Res.*, 108(D3), 4116, doi:10.1029/2002JD002299, 2003.
- Roelofs, G.-J. and Lelieveld, J.: Model study of the influence of cross-tropopause O₃ transport on tropospheric O₃ levels, *Tellus, Ser. B*, 49, 38–55, 1997.
- Rosenblatt, F.: The perceptron : A probabilistic model for information storage and organization in the brain., *Psychol Rev*, 65 (6), 386–408, 1958.
- Rothman, L. S., Jacquemart, D., Barbe, A., Chris Benner, D., Birk, M., Brown, L. R., Carleer, M. R., Chackerian Jr., C., Chance, K., Coudert, L. H., Dana, V., Devi, V. M., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Hartmann, J.-M., Jucks, K. W., Maki, A. G., Mandin, J.-Y., Massie, S. T., Orphal, J., Perrin, A., Rinsland, C. P., Smith, M. A. H., Tennyson, J., Tolchenov, R. N., Toth, R. A., Vander Auwera, J., Varanasi, P., and Wagner, G.: The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database, *J. Quant. Spectrosc. and Radiat. Transfer*, 96, 139–204, 2005.
- Rothman, L. S., Gordon, I. E., Barbe, A., Chris Benner, D., Bernath, P. F., Birk, M., Boudon, V., Brown, L. R., Campargue, A., Champion, J.-P., Chance, K., Coudert, L. H., Dana, V., Devi, V. M., Fally, S., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Jacquemart, D., Kleiner, I., et al.: The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Volume 110, Issues 9–10, June–July 2009, Pages 533–572, 2009.
- Rouil, L., Honoré, C., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Malherbe, L., Meleux, F., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J.-M., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.-H., and Poisson, N.: PREV’AIR: an operational forecasting and mapping system for air quality in Europe, *B. Am. Meteor. Soc.*, 90(1), 73–83, doi:10.1175/2008BAMS2390.1, 2009.

- Rumelhart, D. E., Hinton, G., and Williams, R.: Learning internal representations by error backpropagation, in *Parallel Distributed Processing*, vol. 1, 318-362 pp., MIT Press, Cambridge, Mass., edited by D. Rumelhart and J. McClelland, 1986.
- Schönbein, C.: *Hebdomadae Scantiae Acad. Sci.* 10: 706-710, 1840.
- Schlüssel, P., Hultberg, T. H., Philipps, P. L., August, T., and Calbet, X.: The operational IASI Level 2 processor, *Adv. in Space Res.*, 36, 982-988, doi:10.1016/j.asr.2005.03.008, 2005.
- Schmidt, H., Derognat, C., Vautard, R., and Beekmann, M.: A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in western Europe, *Atmos. Environ.*, 36, 6277-6297, 2001.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N.: *Atmospheric chemistry and physics*, Wiley-Interscience, New York, 1998.
- Shepherd, M. W., Clough, S. A., Payne, V. H., Smith, W. L., Kireev, S., and Cady-Pereira, K. E.: Performance of the line-by-line radiative transfer model (LBLRTM) for temperature and species retrievals: IASI case studies from JAIVEx, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7397-7417, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/7397/2009/.
- Simpson, D.: Long period modeling of photochemical oxidants in Europe, Calculations for July 1985, *Atmos. Environ.*, 26, 1609-1634, 1992.
- Smit, H. G. J., Straeter, W., Johnson, B., Oltmans, S., Davies, J., Tarasick, D. W., Hoegger, B., Stubi, R., Schmidlin, F., Northam, T., Thompson, A., Witte, J., Boyd, I., and Posny, F.: Assessment of the performance of ECC-ozone sondes under quasi-flight conditions in the 10 environmental simulation chamber: Insights from the Juelich Ozone Sonde Intercomparison Experiment (JOSIE), *J. Geophys. Res.*, 112, D19306, doi:10.1029/2006JD007308, 2007.
- Sportisse, B.: *Pollution atmosphérique: Des processus à la modélisation*, Springer-Verlag France, Paris, 2008.
- Stull, R. S.: *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*, Kluwer Academic Publishers, Reidel, 666, 1988.
- Sudo, K. and Akimoto, H.: Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, *J. Geophys. Res.*, 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992, 2007.
- Suutari, R., Amann, M., Cofala, J., Klimont, Z., Posch, M., and Schopp, W.: From Economic Activities to Ecosystem Protection in Europe. An Uncertainty Analysis of Two Scenarios of the RAINS Integrated Assessment Model, EMEP CIAM/CCE Report 1/2001, International Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Austria, 2001.
- Szopa S., Foret, G., Menut, L., Cozic, A.: Impact of large scale circulation on European summer surface ozone: consequences for modeling forecast, *Atmospheric Environment*, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.10.039, 2009.
- Talagrand, O.: Assimilation of Observations, an Introduction, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 75, 191-209, 1997.

- Talagrand, O., Vautard, R., and Strauss, B.: Evaluation of probabilistic prediction systems, paper presented at Seminar on Predictability, Eur. Cent. for Medium Weather Forecasting, Reading, UK, 1998.
- Thiria, S., Mejia, C., Badran, F., and Crepon, M.: A Neural Network Approach for Modeling Nonlinear Transfer Functions: Application for Wind Retrieval From Spaceborne Scatterometer Data, *J. Geophys. Res.*, 98(C12), 22827-22841, 1993.
- Thompson, A. M., Dodderidge, B. G., White, J. C., Hudson, R. D., Luke, W. T., Johnson, J. E., Johnson, B. J., Oltmans, S. J., and Weller, R.: Tropical tropospheric ozone (TTO) maps from Nimbus 7 and Earth Probe TOMS by the modified-residual method: Evaluation with sondes, ENSO signals, trends from Atlantic regional time series, *J. Geophys. Res.*, 104, 26961-26975, 1999.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., McPeters, R. D., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogawa, T., Johnson, B. J., Vömel, H., and Labow, G.: Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology 1. Comparison with Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) and ground-based measurements, *J. Geophys. Res.*, 108(D2), 8238, doi:10.1029/2001JD000967, 2003a.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogawa, T., Fortuin, J. P. F., and Kelder, H. M.: Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998 – 2000 tropical ozone climatology 2. Tropospheric variability and the zonal wave-one, *J. Geophys. Res.*, 108(D2), 8241, doi:10.1029/2002JD002241, 2003b.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., Oltmans, S. J., and Schmidlin, F. J.: Shadoz: A tropical ozonesonde-radiosonde network for the atmospheric community, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 85(10), 1549-1564, 2004.
- Thompson, A. M., Stone, J. B., Witte, J. C., Miller, S. K., Oltmans, S. J., Kucsera, T. L., Ross, K. L., Pickering, K. E., Merrill, J. T., Forbes, G., Tarasick, D. W., Joseph, E., Schmidlin, F. J., McMillan, W. W., Warner, J., Hints, E. J., and Johnson, J. E.: Intercontinental Chemical Transport Experiment Ozone Network Study (IONS) 2004: 2. Tropospheric ozone budgets and variability over northeastern North America, *J. Geophys. Res.*, 112, D12S13, doi:10.1029/2006JD007670, 2007.
- Tiedtke, M.: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Weather Rev.*, 117, 1779–1800, 1989.
- Tikhonov, A.: On the Solution of Incorrectly Stated Problems and a Method of Regularisation, *Dokl. Acad. Nauk SSSR*, 151, 501–504, 1963.
- Troen, I. and Mahrt, L.: A simple model of the atmospheric boundary layer; sensitivity to surface evaporation. *Boundary-Layer Meteorol.*, 37, 129-148, 1986.
- Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: First satellite ozone distributions retrieved from nadir high-resolution infrared spectra, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 2198, doi:10.1029/2002GL016431, 2002.

- Turquety, S.: Mesure de l'ozone troposphérique à partir d'observations satellitaires dans le domaine de l'infrarouge, Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 2003.
- Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., Hauglustaine, D. A., Clough, S. A., Cassé, V., Schlüssel, P., and Mégie, G.: Operational trace gas retrieval algorithm for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, *J. Geophys. Res.*, 109, D21301, doi:10.1029/2004JD004821, 2004.
- Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Josset, D., and Tsamalis, C.: Tracking the emission and transport of pollution from wildfires using the IASI CO retrievals: analysis of the summer 2007 Greek fires, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 4897-4913, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/4897/2009/.
- van Loon, M., Vautard, R., Schaap, M., Bergström, R., Bessagnet, B., Brandt, J., Builtjes, P. J. H., Christensen, J. H., Cuvelier, C., Graff, A., Jonson, J. E., Krol, M., Langner, J., Roberts, P., Rouil, L., Stern, R., Tarrasón, L., Thunis, P., Vignati, E., White, L., et al: Evaluation of long-term ozone simulations from seven regional air quality models and their ensemble, *Atmos. Environ.*, 41(10), 2083-2097, 2007.
- Van Roozendael, M., Loyola, D., Spurr, R., Balis, D., Lambert, J.-C., Livschitz, Y., Valks, P., Ruppert, T., Kenter, P., and Fayt, C.: Ten years of GOME/ERS-2 total ozone data—The new GOME data processor (GDP) version 4: 1. Algorithm description, *J. Geophys. Res.*, 111, D14311, doi:10.1029/2005JD006375, 2006.
- Vautard, R., Beekmann, M., Roux, J., and Gombert, D.: Validation of a hybrid forecasting system for the ozone concentrations over the Paris area, *Atmos. Environ.*, 35, 2449–2461, 2001.
- Vautard, R., Menut, L., Beekmann, M., Chazette, P., Flamant, P. H., Gombert, D., Guédalia, D., Kley, D., Lefebvre, M.-P., Martin, D., Mégie, G., Perros, P., Toupance, G.: A synthesis of the Air Pollution Over the Paris Region (ESQUIF) field campaign, *J. Geophys. Res.*, 108(D17), 8558, doi:10.1029/2003JD003380, 2003.
- Vautard, R., Van Loon, M., Schaap, M., Berström, R., Bessagnet, B., Brandt, J., Builtjes, P. J. H., Christensen, J. H., Cuvelier, C., Graff, A., Jonson, J. E., Krol, M., Langner, J., Robert, P., Rouil, L., Stern, R., Tarraso, L., Thunis, P., Vagnati, E., White, L., and Wind, P.: Is regional air quality model diversity representative of uncertainty for ozone simulation? *Geophys. Res. Lett.*, 33, L24818, doi: 10.1029/2006GL027610, 2006.
- Vautard, R., Builtjes, P. H. J., Thunis, P., Cuvelier, C., Bedogni, M., Bessagnet, B., Honoré, C., Moussiopoulos, N., Pirovano, G., Schaap, M., Stern, R., Tarrason, L., Wind, P.: Evaluation and intercomparison of Ozone and PM10 simulations by several chemistry transport models over four European cities within the CityDelta project, *Atmos. Environ.*, 41,(1), 173-188, 2007.
- Vestreng, V., Adams, M., and Goodwin, J.: Inventory Review 2004, Emission Data reported to CLRTAP and under the NEC Directive, EMEP/EEA Joint Review Report, EMEP/MS-C-W Note 1/2004, ISSN 0804-2446, 2004.

- von Kuhlmann, R., Lawrence, M. G., Crutzen, P., and Rasch, P. J.: A model for studies of tropospheric ozone and nonmethane hydrocarbons: Model description and ozone results, *J. Geophys. Res.*, 108(D9), 4294, doi:10.1029/2002JD002893, 2003.
- Wackernagel, H.: *Multivariate Geostatistics*, Springer-Verlag, Berlin, 2003.
- Warner, T. T., Sheu, R.-S., Bowers, J. F., Sykes, R. I., Dodd, G. C., and Henn, D. S.: Ensemble simulations with coupled atmospheric dynamic and dispersion models: Illustrating uncertainties in dosage simulations, *J. Appl. Meteorol.*, 41, 488–504, 2002.
- Weber, M., Lamsal, L. N., Coldewey-Egbers, M., Bramstedt, K., and Burrows, J. P.: Pole-to-pole validation of GOME WFDOAS total ozone with groundbased data, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1341-1355, 2005.
- Wesely, M. L. and Kicks, B. B.: Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation, *Journal of Air Pollution Control Association*, 27, 1110-1116, 1977.
- Wesely, M. L.: Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition, *Atmos. Environ.* 23, 1293-1304, 1989.
- Wespes, C., Hurtmans, D., Herbin, H., Barret, B., Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., and Coheur, P.-F.: First global distributions of nitric acid in the troposphere and the stratosphere derived from infrared satellite measurements, *J. Geophys. Res.*, 112, D13311, doi:10.1029/2006JD008202, 2007.
- Wespes, C., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Santee, M. L., Martin, R. V., and Coheur, P.-F.: Global distributions of nitric acid from IASI/MetOP measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7949–7962, 2009, www.atmos-chem-phys.net/9/7949/2009/.
- Wilbert, A. C., Kratz, D. P., and Gupta, S. K.: Surface emissivity maps for use in satellite retrievals of longwave radiation, *Tech. Publ. NASA/TP-1999-209362*, 35 pp., Nat. Aeron. and Space Adm., 1999.
- Widrow, B. and Stearns, S. D.: *Adaptive Signal Processing*, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, N.J., 1985.
- World Meteorological Organization (WMO): Scientific Assessment of ozone depletion : 1998, Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No. 44, Geneva, 1999.
- Worden, J., Kulawik, S. S., Shephard, M. W., Clough, S. A., Worden, H., Bowman, K., and Goldman, A.: Predicted errors of tropospheric emission spectrometer nadir retrievals from spectral window selection, *J. Geophys. Res.*, 109, D09308, doi:10.1029/2004JD004522, 2004.
- Worden, H. M., Logan, J. A., Worden, J. R., Beer, R., Bowman, K., Clough, S. A., Eldering, A., Fisher, B. M., Gunson, M. R., Herman, R. L., Kulawik, S. S., Lampel, M. C., Luo, M., Megretskaya, I. A., Osterman, G. B., and Shephard, M. W.: Comparisons of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) ozone profiles to ozonesondes: Methods and initial results, *J. Geophys. Res.*, 112, D03309, doi:10.1029/2006JD007258, 2007.
- Zhou, L., Goldberg, M., Barnet, C., Cheng, Z., Sun, F., Wolf, W., King, T., Liu, X., Sun, H., and Divakarla, M.: Regression of surface spectral emissivity from hyper spectral

instruments, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 46(2), 328– 333, doi:10.1109/TGRS.2007.912712, 2008.

Zhang, L., Jacob, D. J., Bowman, K. W., Logan, J. A., Turquety, S., Hudman, R. C., Qinbin, L., Beer, R., Worden, H. M., Worden, J. R., Rinsland, C. P., Kulawik, S. S., Lampel, M. C., Shephard, M. W., Fisher, B. M., Eldering, A., and Avery, M.: Ozone-CO correlations determined by the TES satellite instrument in continental outflow regions, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L18804, doi:10.1029/2006GL026399, 2006.

Ziemke, J. R., Chandra, S., and Bhartia, P. K.: Two new methods for deriving tropospheric column ozone from TOMS measurements: Assimilated UARS MLS/HALOE and convective-cloud differential techniques, *J. Geophys. Res.*, 103, 22115-2127, 1998.

